УДК 621.039.526

# ИССЛЕДОВАНИЕ СПЛАВА СБЯ ПОСЛЕ 30-ЛЕТНЕЙ ЭКСПЛУАТАЦИИ В СОСТАВЕ КАССЕТЫ АВАРИЙНОГО СНИЖЕНИЯ МОЩНОСТИ РЕАКТОРА ВК-50

© 2012 Д.В. Козлов<sup>1</sup>, В.Д. Рисованый<sup>2</sup>

### <sup>1</sup> Ульяновский государственный университет <sup>2</sup> ОАО «ГНЦ РФ НИИАР», г. Димитровград

#### Поступила в редакцию 20.11.2012

В статье описаны исследования образцов сплава СБЯ, изготовленных из кассеты аварийного снижения мощности реактора ВК-50 после 30-летней эксплуатации. Совместное применение металлографии, рентгеноструктурного анализа, сканирующей и просвечивающей микроскопии позволило получить достаточно полные сведения об изменениях, произошедших в результате длительного радиационно-термического воздействия. Проведены измерения микротвердости и плотности образцов. Для изучения поведения накопленного трансмутационного гелия, образцы подвергнуты отжигу при температуре 800 °C.

Ключевые слова: бористые стали, поглощающие материалы, органы регулирования ядерных реакторов.

#### введение

Сплав СБЯ представляет собой высоколегированный аустенит с высоким (1,6-2%) содержанием бора, что делает этот материал весьма эффективным поглотителем нейтронов, и позволяет использовать его в органах управления ядерными реакторами. Вкладыши из сплава СБЯ используются в кассетах аварийного снижения мощности реактора ВК-50.

Химический состав исследуемой стали приведен в табл. 1.

Структура бористой стали состоит из раствора хрома в гамма-фазе железа и из боридной фазы ( $CrB_2$ ,  $FeB_2$ ), которая на металлографических шлифах имеет реечную форму [1,2].

Исследовался материала втулки, эксплуатировавшейся в составе вкладыша кассеты для аварийного снижения мощности (АК) реактора ВК-50 в течение 31 года [3]. Втулка из сплава СБЯ с содержанием <sup>10</sup>В примерно 1,5 % входит в конструкцию кассеты, ее наружный диаметр 143<sub>.0,5</sub> мм, толщина стенки 6 мм.

Кассета АК подвешивается на штанге и имеет возможность перемещаться внутри направляющей трубы. При работе реактора на мощности она находится в верхнем положении, при котором втулка из сплава СБЯ располагается выше активной зоны и ее нижняя часть может охлаждаться попеременно недогретой на 5-7 °С до температуры кипения водой и пароводяной смесью, имеющей температуру 250-285 °С. На остановленном реакторе втулка находится в активной зоне и охлаждается водой, имеющей температуру корпуса реактора. Кассета АК эксплуатировалась в реакторе ВК-50 в течение 271500 ч.

Распределение флюенса нейтронов по высоте втулки кассеты АК показано на рис. 2. Для исследований от нижней, ближней к АЗ, части втулки было отрезано кольцо высотой 10 мм.

## СОСТОЯНИЕ И СВОЙСТВА МАТЕРИАЛА ВТУЛКИ

На рис. З показана нижняя торцевая поверхность втулки. Ее состояние аналогично состоянию внутренней и внешней поверхностей втулки, контактировавших с водой, которые покрыты серо-коричневым налетом минимальной толщины. Количество отложений небольшое, и их осыпания при манипуляциях не происходило. Крупные трещины и очаги коррозии при визуальном осмотре не обнаружены. На разрезе материал втулки имел характерный для металла цвет и блеск.

Плотность материала измеряли методом гидростатического взвешивания в четыреххлористом углероде на дистанционно управляемой установке УВА-100ПЛ. Относительная погрешность определения плотности не превышала 1,6 %. В результате облучения объемное распухание сплава составило около 5,4 %, а после отжига увеличилось до 20 %.

Сегменты кольца подвергли ударному разрушению при комнатной температуре на копре ударом молота массой 30 кг. Ударная вязкость облученного образца, рассчитанная стандартным способом при испытаниях сегментов, а<sub>к</sub> = 12...20 Дж/ см<sup>2</sup>. При аналогичных условиях ударная вязкость

Козлов Дмитрий Владимирович, кандидат физико-математических наук, директор центра коллективного пользования научным оборудованием. E-mail: kozlovdv@ulsu.ru Рисованый Владимир Дмитриевич, доктор технических наук, заместитель директора. E-mail: risovanyy@yandex.ru

	Марка	Массовое содержание, %								
		Fe	В	Cr	Ni	Co	Al	С	Mo	W
	СБЯ-2		1,6-2,0	19-22	15-18	0,02	0,4	0,05		



**Рис. 1.** Увеличение объема облученных образцов из бористых сталей с различной массовой долей бора от температуры отжига [4]: 2 % (1); 1 % (2)



Рис. 3. Торцевая поверхность втулки кассеты АК

образца-свидетеля составляла около 29 Дж/см<sup>2</sup>. На рис. 4 показаны поверхности разрушения одного из испытанных образцов. В большинстве случаев разрушение произошло по поверхностным дефектам (поверхностные трещины либо очаги коррозии), которые служили концентраторами напряжений при ударе. Наличием концентраторов объясняются разброс полученных значений ударной вязкости для испытанных образцов и их от-





**Рис. 2.** Распределение флюенса нейтронов по высоте втулки из бористой стали кассеты АК реактора ВК-50 с различной энергией нейтронов: 0,1 МэВ < E < 10 МэВ (●);0,5 МэВ < E < 10 МэВ ( ○ );

носительно низкие значения.

На рис. 5 показаны поверхности излома образца-свидетеля и образца облученного материала, полученные на растровом электронном микроскопе. Вид разрушения обоих образцов одинаков: транскристаллитное хрупкое разрушение. Излом образцов-свидетелей вблизи их поверхностей имел более вязкий характер по сравнению с изломом внутреннего объема материала, и его можно охарактеризовать как квазихрупкий. Облученный образец по всему сечению разрушился без заметных следов пластической деформации. На изломах образца-свидетеля и облученного образца наблюдали вторичные зернограничные трещины.

Типичный вид микроструктуры облученного сплава СБЯ показан на рис. 6. Принципиальных отличий микроструктур в различных сечениях не наблюдалось.



**Рис. 4.** Поверхности разрушения облученных образцов бористой стали СБЯ после ударных испытаний (а<sub>к</sub> = 12 Дж/см<sup>2</sup>)





**Рис. 5.** Поверхность излома образца-свидетеля сплава СБЯ (а) и образца облученной втулки (б)





**Рис. 6.** Микроструктура облученного сплава СБЯ: осевое (а) и поперечное (б) сечения втулки



**Рис. 7.** Макроструктура образца облученного сплава СБЯ в осевом сечении

На рис. 7 показано осевое сечение кольца, отрезанного от втулки. Наблюдались два вида эксплуатационных поверхностных повреждений материала втулки: очаговая коррозия и растрескивание. Причем трещина имелась и на поверхности нижнего торца втулки.

Очаги коррозии могут являться инициаторами трещин. На рис. 8. видно, что трещина зародилась на поверхности слоя продуктов коррозии,



и показан результат развития этого процесса: трещина прошла всю толщину слоя продуктов коррозии и распространилась в металл.

Микротвердость облученного сплава СБЯ составила 2700-3600 МПа.

#### ОТЖИГ ОБЛУЧЕННЫХ ОБРАЗЦОВ

Были проведены отжиги образцов облученной втулки при температуре 800 °С в течение 1 ч. Принципиальных изменений в микроструктуре облученного сплава СБЯ методом металлографии не выявлено. На рис.9 показана структура отожженного сплава до и после травления. Микротвердость отожженного сплава СБЯ понизилась до 900-1000 МПа.

После облучения сохранилась двухфазная структура бористой стали, представляющая собой смесь крупных зерен аустенита и более мелких скоплений зерен борсодержащей фазы. На



**Рис. 8.** Поверхностное повреждение втулки из сплава СБЯ: зарождение трещины в очаге коррозии (а); развитие трещины (б)





**Рис. 9.** Микроструктура облученного сплава СБЯ после отжига при температуре 800 °С в течение 1 ч: до (а) и после травления (б)

рис.10 приведена микродифракционная картина области межфазной границы, где наряду с рефлексами от аустенита наблюдаются рефлексы от борсодержащей фазы. В обеих фазах наблюдаются гелиевые пузырьки.

Наиболее крупные пузырьки (до 100 нм) находятся в аустените в приграничных с борсодержащей фазой областях. По мере удаления от межфазной границы размер пузырьков уменьшается, а концентрация возрастает. При достаточном удалении от межфазной границы размер пузырьков не превышает 2,5 нм при их концентрации примерно 5·10<sup>17</sup> см<sup>3</sup>. Гелиевые пузырьки в борсодержащей фазе имеют некоторую огранку, в то время как в аустените они сферические (см. рис.10).

Распухание аустенита, обусловленное наличием гелиевых пузырьков, оценивается значением (10±4)% вблизи межфазных границ и примерно 0,4 % при удалении от них, а распухание борсодержащей фазы около 1,2 % при концентрации пузырьков примерно 2,5•10<sup>16</sup> см<sup>-3</sup>. Средний размер пузырьков в борсодержащей фазе составил 9 нм.

Элементы структуры облученного сплава СБЯ после отжига при температуре 800°С в течение 1 ч показаны на рис. 11.

В результате отжига размеры пузырьков гелия как в аустените, так и в борсодержащей фазе увеличились. Максимальный размер пузырьков



**Рис. 10.** Структура облученного сплава СБЯ: микродифракционная картина области межфазной границы (а); межфазная граница, гелиевые пузырьки в аустените и борсодержащей фазе (б); гелиевые пузырьки: в борсодержащей фазе (в) и в аустените (г, д, е)





*а* б **Рис. 11.** Структура облученного сплава СБЯ после отжига при температуре 800 °С в течение 1 ч: гелиевые пузырьки в аустените, режим просвечивания (а); гелиевые пузырьки в аустените и борсодержащей фазе, режим сканирования (б)

наблюдался на границах раздела двух фаз и достигал 0,5 мкм. В борсодержащей фазе средний размер пузырьков также увеличился и составил примерно 60 нм, а концентрация уменьшилась до 6·10<sup>14</sup> см<sup>-3</sup>. После отжига распухание борсодержащей фазы составило примерно 9 %, а аустенита 15% и более.

Рентгеновские исследования облученных образцов сплава СБЯ проводили с помощью дистанционного дифрактометра ДАРД. Рефлексов боридной фазы обнаружить не удалось из-за методических трудностей подготовки образцов. Период кристаллической решетки аустенита, вычисленный из рентгенограммы, снятой с внешней поверхности кольца, равен (0,3581±0,0001) нм, а с внутренней (0,3582±0,0001) нм. Из сравнения этих значений с данными исследований образца-свидетеля можно сделать вывод, что при облучении сплава СБЯ изменения среднего объема элементарной ячейки аустенита не произошло. Замечено лишь закономерное увеличение ширины дифракционных линий. Кроме линий аустенита, на рентгенограммах имеются дифракционные линии шпинельной фазы с параметром решетки а=0,8353 нм, что близко к табличным значениям фазы FeCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Очевидно, это – продукты взаимодействия сплава СБЯ и воды, о наличии которых в очагах коррозии на поверхностях втулки говорилось выше.

В результате отжига облученного сплава СБЯ при температуре 800 °С в течение 1 ч период решетки аустенита увеличился до (0,3595 $\pm$ 0,0001) нм, что, вероятно, объясняется перераспределением элементов между фазами, наличие которого было подтверждено электронно-микроскопическими исследованиями. После отжига в два раза увеличилась ширина линии (002) (H<sub>1/2</sub>=1,08°), что можно объяснить различной степенью протекания процессов перераспределения элементов в различных зернах аустенита.

Для определения выгорания <sup>10</sup>В в сплаве СБЯ вырезали образец (7х1х1 мм), который позволял

определить выгорание <sup>10</sup>В по толщине втулки. Изотопный состав бора определяли с помощью энергомасс-анализатора ЭМАЛ-2, в основе работы которого лежит масс-спектрометрический метод. Выгорание <sup>10</sup>В определяли с использованием отношения доли изотопов <sup>10</sup>В и <sup>11</sup>В в природном боре до и после облучения. Определенное отношение доли изотопов <sup>10</sup>В и <sup>11</sup>В практически одинаково по толщине втулки и составляет 0,0003. Учитывая, что отношение доли изотопов <sup>10</sup>В и <sup>11</sup>В в природном необлученном боре равно 0,247, получаем выгорание <sup>10</sup>В в облученном сплаве СБЯ, равное (99,9±0,1) %. Наблюдаемые изменения подобны описанным в работах [5, 6] приведены данные по исследованию шестигранных втулок из бористой стали СБЯ-2, которые эксплуатировались в реакторе ВВЭР-2 АЭС «Райнсберг». Более высокие значения объемного распухания материала кассеты ВК-50 до и после отжига, объясняются более высоким флюенсом нейтронов и временем эксплуатации.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Влияние нейтронного облучения на микроструктуру и механические свойства борсодержащих сталей проявляется в «традиционном» упрочнении, снижении пластичности и охрупчивании, связанном с образованием радиационных дефектов, а так же в накоплении и диффузионном перераспределении трансмутационного гелия образующегося в ходе протекающей с участием <sup>10</sup>В (п, □)-реакции.

2. В условиях ударного нагружения при комнатной температуре облученный образец разрушился без видимых следов пластической деформации, с образованием вторичных межзеренных трещин

3. В результате облучения объемное распухание сплава составило около 5,4 %, а после отжига увеличилось до 20 %. Заметно, что изменение плотности происходит вместе с образованием и ростом гелиевых пузырей. Их размер увеличивается на межфазных границах до 100 нм в облученном, и до 500нм в отожженном материале.

4. После 30-летней эксплуатации достигнуто практически полное выгорание <sup>10</sup>В.

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки в рамках ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009 – 2013 годы и государственного задания на 2012-2014 гг.

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Поглощающие материалы для регулирования ядерных реакторов. Пер. с английского / Под редакцией Б.Г.Арабея и В.В.Чекунова. М.: Атомиздат, 1965 г. 450 с.
- 2. *Емельянов И.Я., Гребенников Р.В., Сергеев Б.С. и др.* Влияние вольфрама и молибдена на радиационную

стойкость бористого хроможелезоникелевого сплава // Труды конференции СЭВ "Атомная энергетика, топливные циклы, радиационное материаловедение" М. Изд-во СЭВ, 1971. С. 495-505

- Худяков А.А., Островский З.Е., Рисованый В.Д., и др. Состояние сплава СБЯ после 31 года эксплуатации в реакторе ВК-50 // Атомная энергия. 2002. Т.92. Вып.2. С.114-118
- Murgatroyd R.A., Kelly B.T. Technology and assessment of neutron absorbing materials // J. Atomic energy review. 1977. V.15 №1. P.3-74.
- Котельников Ю.Г., Пономаренко В.Б., Чернышов В.М. и др. Современное состояние проблем поглощающих материалов для ядерных реакторов различного назначения // Труды третьей межотраслевой конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 1994. Т.1. С.12-25.
- Кузнецов С.А., Пономаренко В.Б., Меламед В.Е. и др. Радиационная стойкость поглощающих материалов для регулирующих органов системы управления и защиты ядерных реакторов АЭС // Сб. докл. Международной конференции по радиационному материаловедению. Харьков: ХФТИ, 1990. Т.З.С.189-198.

## STUDY OF ALLOY SBN AFTER 30 YEARS OPERATING IN STRUCTURE ABSORBED ASSEMBLES OF VK-50 NUCLIAR REACTOR

© 2012 D.V. Kozlov<sup>1</sup>, V.D. Risovaniy<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Ulyanovsk State University

<sup>2</sup>Joint Stock Company "State Scientific Center Research Institute of Atomic Reactors", Dimitrovgrad

The article describes research SBN alloy samples made from parts of absorbed assemblies. The combined use of metallography, X-ray diffraction, scanning and transmission electron microscopy allowed us to obtain sufficiently complete information about the changes that have occurred as a result of long-term radiation-thermal effects. The measurements of microhardness and density of the samples carred out. In addition the behavior of accumulated transmutation helium in samples was study after annealed at 800 °C. Key words: boron steel, absorbent materials, the regulatory authorities of nuclear reactors

Kozlov Dmitry, Candidate of Technics, Director of the Scientific Equipments Using Centre. E-mail: kozlovdv@ulsu.ru Risovaniy Vladimir, Doctor of Technics, Deputy Director. E-mail: risovanyy@yandex.ru