

特约专栏

国产压力容器材料辐照性能研究

林 贇, 张长义, 宁广胜, 佟振峰, 杨 文

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘 要: 压力容器是压水堆核电站全寿期不可更换的关键部件, 是核电站安全与寿命的决定因素之一。在长期服役过程中, 引起压力容器性能下降的最主要因素是长时间大剂量高能量中子的辐照。辐照将引起压力容器材料韧性降低、脆性升高, 从而增加压力容器脆性断裂的潜在危险。因此, 压力容器材料抗辐照脆化能力一直是该领域国内外关注的焦点之一。文章针对国产压力容器材料, 开展了一定剂量水平(约 $3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$, $E \geq 1 \text{ MeV}$)的研究堆加速辐照考验, 进行了辐照后材料力学性能测试分析, 包括冲击性能, 动态断裂韧性, 以及疲劳性能。同时, 将辐照后性能测试结果与辐照前进行对比, 分析评价了国产压力容器材料的抗辐照性能。

关键词: 压力容器; 中子辐照; 辐照脆化

中图分类号: TL341 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-3962(2011)05-0007-04

Irradiation Property of Pressure Vessel Materials in China

LIN Yun, ZHANG Changyi, NING Guangsheng, TONG Zhenfeng, YANG Wen

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: Pressure vessel is the critical and unchangeable component of the PWR during its service lifetime, which determines the lifetime of nuclear power plant. The property decline of pressure vessel is mainly caused by large dose and high energy neutron irradiation during the long term service. Irradiation can reduce the toughness and increase the brittleness of the pressure vessel materials, thus raising the potential risk of brittle fracture. So irradiation embrittlement resistance of pressure vessel materials has been the focus in the field all over the world. The irradiation test ($\sim 3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$, $E \geq 1 \text{ MeV}$) in research reactor of the pressure vessel material has been carried out. And the mechanical performances have been tested and analyzed after neutron irradiation, including impact property, dynamic fracture toughness, and fatigued property. Meanwhile, by comparing the properties of un-irradiated and irradiated material, we can evaluate the irradiation embrittlement resistance of the pressure vessel material.

Key words: pressure vessel; neutron irradiation; irradiation embrittlement

1 前 言

当前, 全世界都面临着资源持续利用和环境保护的巨大挑战, 核能作为新型的清洁能源受到了愈来愈多的重视, 同时有关核能开发使用的安全技术也愈加成熟。目前, 我国正在建设的核电机组数量位居世界之首, 并且我国主要在役核电站均为压水堆核电站, 如表 1 所示^[1]。而在压水堆中, 反应堆压力容器(RPV)属于不可更换的非能动长寿命安全相关部件, 其服役寿命决定了整个核电站的寿命。RPV 服役寿命主要受制于 RPV 材料的抗中子辐照脆化和疲劳性能。辐照脆化是指材料在

受到中子辐照后强度升高, 塑性和韧性下降, 尤其是屈服强度升高较快、均匀延伸率下降较大, 材料变脆。随着核电建设的逐步展开, 我国在 20 世纪 60 年代就开始进行核反应堆压力容器钢的研制, 并且对核反应堆压力容器用 A508-III 钢的认识在不断进步, 可以说基本上掌握了 A508-III 钢的生产制造技术。因此, 开展对国产压力容器材料 A508-III 钢的辐照试验及辐照后性能研究具有重要意义^[1-5]。

表 1 中国现阶段运行的核电厂

Table 1 Working nuclear power plants at present in china

Name	Type	Status	Generated energy/MW
First phase of qinshan	PWR	Working	300
Daya bay	PWR	Working	984 × 2
Ling-ao	PWR	Working	985 × 2
Third phase of qinshan	HWR	Working	728 × 2
Second phase of qinshan	PWR	Working	642 × 2
Tianwan	PWR	Operating	1 060 × 2

收稿日期: 2011-04-06

基金项目: 国家重点基础研究发展计划(2011CB610503)和国家自然科学基金(10975194)资助项目

通信作者: 杨文, 男, 1967 年生, 研究员, 博士生导师

本研究针对国产 RPV 材料开展辐照性能研究, 并进行堆内中子辐照试验, 同时对辐照前后国产 RPV 材料进行力学性能测试, 主要包括冲击性能, 动态断裂韧性, 疲劳性能测试。通过比较国产 RPV 材料辐照前后力学性能差异, 分析评价了国产 RPV 材料的抗辐照性能。

表 2 A508-III 钢的合金含量 (w/%)
Table 2 Components of A508-III steel (w/%)

Components	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Mo	V	Cu	Co	As	Sn	Sb	Al	B	Fe
Contents, w/%	0.19	0.17	1.41	0.003	0.002	0.12	0.74	0.48	0.002	0.03	0.006	0.003	<0.002	0.0007	0.016	0.0003	Bal.

2.2 试样及辐照装置

试样及辐照装置示意图如图 1 所示, 工艺管内部安装的三段式电加热元件分别位于装置的上、中、下 3 部分。电热元件外套铝管, 铝管与辐照装置同心。试样围绕铝管摆放, 铠装 NiCr-NiAl 热电偶镶嵌在模拟试样中, 以便如实地反映和控制试样的辐照温度。在辐照期间, 试样随着辐照装置定期旋转一个方位角, 以消除试样面对堆芯与背对堆芯注量率差和注量差。

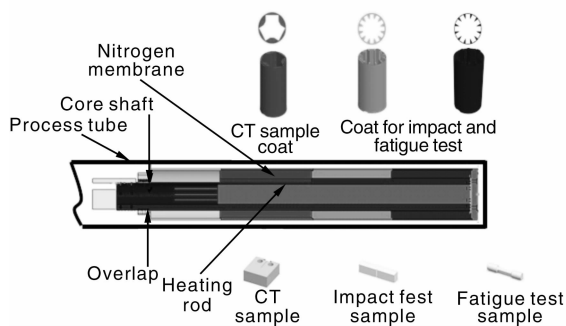


图 1 试样及辐照装置示意图

Fig. 1 General View of the Irradiation Sample and Device

冲击试样是尺寸为 10 mm × 10 mm × 55 mm 的标准 Charpy V 型槽试样。动态断裂韧性试样外形尺寸与标准 Charpy 试样相同, 在试样中部 (27.5 mm 处) 进行线切割, 其深度为 2.5 mm, 再预制 2.5 mm 深的疲劳裂纹。疲劳试样形状为棒状, 依据标准 GB/T15248-94 进行设计, 试样的试验段 (平行段) 长度为 15 mm, 直径为 5 mm。

2.3 辐照参数

中子辐照参数如表 3 所示。

表 3 中子辐照参数
Table 3 Parameters of Neutron Irradiation

Sample	Dose ($E \geq 1$ MeV) / $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$	Fluence ($E \geq 1$ MeV) / $n \cdot cm^{-2}$	Estimated Temperature/°C	Actual Temperature/°C
Fatigue Test	1.08×10^{13}	3.46×10^{19}	290	315
Impact Test	9.84×10^{12}	3.16×10^{19}		
K_{ID} Test	8.61×10^{12}	2.77×10^{19}		

2 辐照性能测试

2.1 RPV 材料

本研究所用样品试样为国产 A508-III 钢, 其合金含量如表 2 所示。

2.4 性能测试

2.4.1 冲击性能测试

冲击试验参照 GB/T229 和 ASTM E23 标准完成。使用美国 Tinius Olsen 试验机公司生产的 T-84 型示波冲击机, 其摆锤可利用能量为 41.5 kg · m, 冲击速度为 5.46 m/s。采用日本制造的数字温度控制仪表控温和测温 (室温及以上温度偏差小于 0.5 °C, 室温以下温度偏差小于 1 °C)。采用美国制造的侧膨胀仪测量侧膨胀量, 其测量精度为 0.01 mm。

2.4.2 动态断裂韧性测试

动态断裂韧性试验采用多温度点测试, 并依据 ASTM E1921-02 标准判断试验数据的有效性。使用美国 Tinius Olsen 试验机公司生产的 T-84 型示波冲击机, 其最大冲击能量为 400 J, 最高冲击速度为 5.4 m/s, 并且锤头内预置应变传感器, 砧座旁安装光电感应器, 其可连续采集和显示摆锤的速度、试样的载荷、冲击能、试样挠度随时间变化曲线。

2.4.3 疲劳性能测试

金属材料轴向等幅低周循环疲劳试验参考 GB/T 15248-94 标准完成。使用 CSS-280H 电液伺服动静试验机, 其机械单元为国产, 电控单元由美国 MTS 公司制造。疲劳试验在室温及大气环境下进行, 应变速率为 0.5%/s, 并且当拉伸应力的峰值减小 25% 或者发生断裂时视为试样失效。

3 结果与讨论

3.1 冲击性能

由冲击试验数据可以得出 T_{41J} , T_{68J} , $T_{0.89mm}$ 以及 T_{50} 。表 4 所示为国产 RPV 材料 A508-III 钢辐照前后的冲击性能对比。图 2 为国产 RPV 材料 A508-III 钢侧膨胀量 - 温度曲线, 图 3 为国产 RPV 材料 A508-III 钢及国产 RPV 材料 SA508-3 钢分别在辐照前后冲击功 - 温度曲线对比。

由表 4、图 2 可知辐照后的 A508-III 钢的 $\Delta T_{41J} = 10$ °C, $\Delta T_{68J} = 9$ °C, $\Delta T_{0.89mm} = 9$ °C, $\Delta T_{50} = 11$ °C, 各

温度增量较为一致,均保持在 10 ℃左右。

表 4 A508-Ⅲ钢辐照前后冲击性能
Table 4 Impact Property of A508-Ⅲ Steel

	Temperature/℃		ΔT
	Un-irradiated	Irradiated	
T_{41J}	-42	-32	10
T_{68J}	-33	-24	9
$T_{0.89\text{ mm}}$	-41	-32	9
T_{50}	-24	-13	11

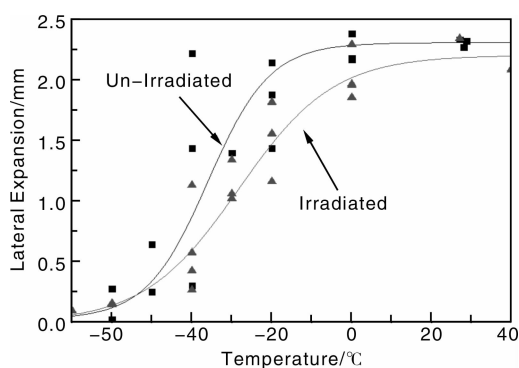


图 2 国产 RPV 材料 A508-Ⅲ钢侧膨胀量 - 温度曲线

Fig. 2 Lateral expansion - temperature transition curve of A508-Ⅲ steel

由图 3 可知, 国产 RPV 材料 A508-Ⅲ钢经中子辐照后, 其 ΔT_{41J} 数值较低, 仅为 10 ℃, 而日本 RPV 材料 SA508-3 钢经辐照后, 其 ΔT_{41J} 达到 52 ℃, 造成这种差异可能主要有 2 方面原因^[5]: ①辐照温度的影响, 有研究表明, 在 260 ~ 316 ℃ 之间辐照, 每降低辐照温度 1 ℃, ΔT_{41J} 上升 0.4 ~ 2 ℃, 平均值为 1 ± 0.2 ℃/℃。而国产 RPV 材料 A508-Ⅲ钢的辐照温度高达 315 ℃, 日产 RPV 材料 SA508-3 钢辐照温度仅为 280 ℃, 参考每提高 1 ℃ 辐照温度, ΔT_{41J} 平均降低 1 ℃, 国产 RPV 比日产 RPV 的辐照温度高 35 ℃, 因此国产 RPV ΔT_{41J} 约比日产 RPV ΔT_{41J} 值低 35 ℃, 这与实际差值 (42 ℃) 较为接近; ②注量差异的影响, 有研究表明, 随着中子注量增加, 508-3 钢的韧脆转变温度 ΔT_{41J} 增大, 国产 RPV 材料 A508-Ⅲ钢注量为 3.16×10^{19} n/cm², 日产 RPV 材料 SA508-3 钢注量为 3.2×10^{19} n/cm², 因此日产 RPV 材料的 ΔT_{41J} 高于国产 RPV 材料的 ΔT_{41J} , 但同时研究表明, 当注量在 3×10^{19} n/cm² 之后这种增大关系逐渐趋于饱和。而 2 种 RPV 材料的注量均大于了 3×10^{19} n/cm², 故该因素带来的影响应该较小。结合以上 2 点的影响, 国产 RPV 材料与日产 RPV 材料之间 ΔT_{41J} 差异应属于正常范围。

参考 NRC-10CFR50 附录 G^[5] 中说明, 反应堆容器材料上平台能量 USE 值 ≥ 102 J, 寿期末不能小于 68 J。

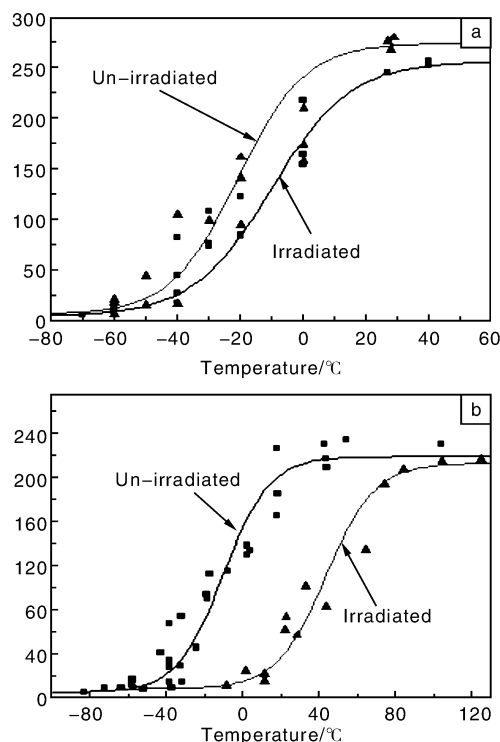


图 3 RPV 材料辐照前后冲击功 - 温度曲线: (a) 国产 RPV 材料 (b) 日产 RPV 材料

Fig. 3 Impact energy - temperature transition curve of RPV materials: (a) materials made in China and (b) materials made in Japan

由国产 A508-Ⅲ钢出厂原始数据及冲击试验数据可知: 参考转变温度 $RT_{NDT} \leq -20$ ℃, $\Delta RT_{NDT} = 10$ ℃, $\sigma_0 = 10$, $\sigma_\Delta = 7$; 其中 σ_0 为辐照前 RT_{NDT} 的测量标准偏差, σ_Δ 为测 ΔRT_{NDT} 时的标准偏差。

$$ART = RT_{NDT} + \Delta RT_{NDT} + 2 \sqrt{\sigma_0^2 + \sigma_\Delta^2} \quad (1)$$

根据式 (1) 计算可得, $ART = 14.41$ ℃。

由冲击试验数据可知, 国产 A508-Ⅲ钢经辐照后 $T_{41J} = -37$ ℃, 小于 ART 值 (14.41 ℃); 上平台能量为 258 J, 大于上平台能量 USE 值 (102 J)。由此可知, 国产 A508-Ⅲ钢经中子辐照 (注量率 9.84×10^{12} n/cm²s, 注量 3.16×10^{19} n/cm²) 后, 虽然韧性降低, 但性能仍满足使用要求。

3.2 动态断裂韧性

试样的中子辐照注量为 2.77×10^{19} n/cm² ($E > 1$ MeV), 辐照温度达到 315 ℃。辐照前后的动态断裂韧度 - 温度曲线以及 5% 和 95% 的容许偏差界线如图 4 所示。

A508-Ⅲ钢是低合金铁素体钢, 具有冷脆性, 即在一定的温度范围内, 随着温度下降而逐渐变脆 (断裂韧度、冲击韧度逐渐降低), 直至达到完全脆性。由图 4 中数据可知, A508-Ⅲ钢经中子辐照后, 脆化倾向加剧,

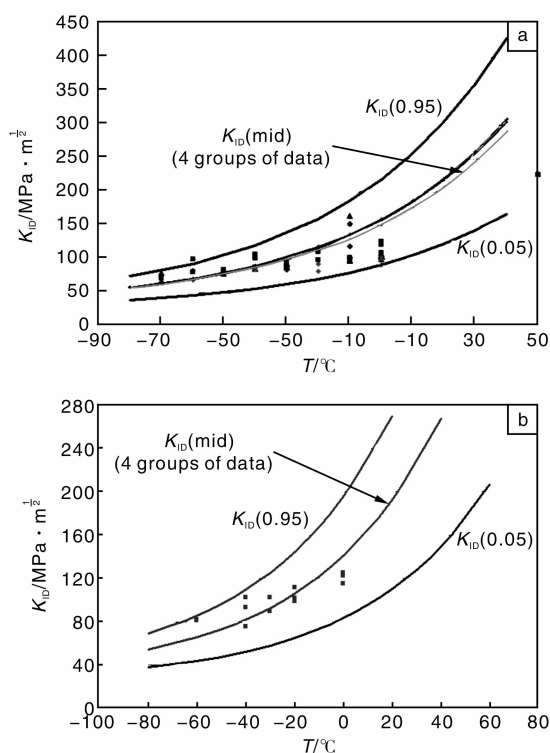


图 4 A508-III 钢辐照前后动态断裂韧度 - 温度曲线:

(a) 辐照前, (b) 辐照后

Fig. 4 K_{ID} - temperature transition curve of A508-III steel:

(a) un-irradiated and (b) irradiated

韧性降低, 其主要表现为试样辐照前的参考转变温度 T_0 为 $-34\text{ }^{\circ}\text{C}$, 而辐照后的参考转变温度 T_0 为 $-24\text{ }^{\circ}\text{C}$, 参考转变温度增量 ΔT_0 为 $10\text{ }^{\circ}\text{C}$, 这一结果与冲击试验结果基本一致, 温度增量均为 $10\text{ }^{\circ}\text{C}$ 左右。

3.3 疲劳性能

图 5 中给出辐照前与辐照后国产 A508-III 钢的疲劳寿命曲线的对比, 由图可知, 辐照对于 A508-III 钢的疲劳寿命产生了一定的影响。对于不同的应变幅所对应的平均疲劳寿命而言, 辐照后材料的疲劳寿命大约是未辐照材料疲劳寿命的 $2/3$ 。这是由于在辐照过程中, 辐照缺陷阻碍了位错运动, 造成位错塞积, 能量难以释放在局部形成较高的内应力, 导致位错塞积区较为容易萌生出微裂纹, 从而缩短了疲劳寿命。

4 结 论

(1) 国产 A508-III 钢经中子辐照 (注量率 $9.84 \times 10^{12}\text{ n/cm}^2\text{ s}$, 注量 $3.16 \times 10^{19}\text{ n/cm}^2$) 后, 虽然韧性降

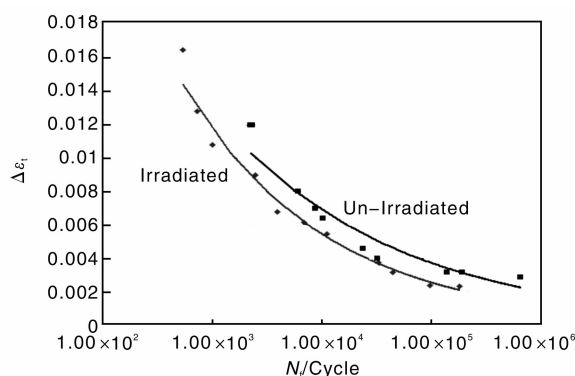


图 5 辐照前后 A508-III 钢的总应变幅 - 疲劳寿命曲线

Fig. 5 Strain amplitude - lift cycles transition curve of A508-III Steel

低, 脆性有所增加, 但性能仍满足使用要求 (ART 及上平台能量限制要求)。

(2) 通过测量 A508-III 钢辐照前后的动态断裂韧度 - 温度关系曲线可知, 未辐照 A508-III 钢的参考转变温度 T_0 为 $-34\text{ }^{\circ}\text{C}$, 而辐照后 A508-III 钢的参考转变温度 T_0 为 $-24\text{ }^{\circ}\text{C}$, 参考转变温度增量 ΔT_0 为 $10\text{ }^{\circ}\text{C}$, 这个结果与冲击试验结果接近。

(3) 通过观察总应变幅 - 疲劳寿命曲线可以看出, A508-III 钢辐照后疲劳寿命明显低于未辐照材料, 其疲劳寿命 (均值) 大约是未辐照材料疲劳寿命的 $2/3$, 这表明中子辐照对于 A508-III 钢的疲劳特性和疲劳寿命产生了一定的影响。

参考文献 References

- [1] Liu Xiangyang (刘向阳). *Special Reports On New Energy Technology* (我国核电技术发展现状及存在的问题) [J]. *Newenergy Technology* (新能源技术专题), 2010(6): 59-66.
- [2] Li Chengliang (李承亮), Zhang Mingqian (张明乾). 压水堆核电站反应堆压力容器材料概述 [J]. *Materials Review* (材料导报), 2008, 22(9): 65-67.
- [3] Wan Qiangmao (万强茂), Wang Rongshan (王荣山), Shu-Guogang (束国刚), et al. 美国压水堆 RPV 延寿分析及中国 RPV 延寿之关键问题 [J]. *Pressure Vessel Technology* (压力容器), 2010, 27(6): 47.
- [4] Shu Guogang (束国刚), Lu Nianwen (陆念文). 压水堆核电厂关键金属部件的老化和寿命评估 [J]. *Electric Power* (中国电力), 2006, 39(5): 53-58.
- [5] Yang Wendou (杨文斗). *Reactor Materials* (反应堆材料学) [M]. Beijing: Atomic Energy Press, 2000: 160-175.