

Forskning

Instabila matrisdefekter i bestrålat reaktortankstål med höga nickel- och manganhalter

2023:06

Författare: Magnus Boåsen, Kungliga Tekniska Högskolan, Stockholm Kristina Lindgren, Chalmers Tekniska Högskolan, Göteborg Pål Efsing, Kungliga Tekniska Högskolan, Stockholm

Datum: Mars 2023 Rapportnummer: 2023:06 ISSN: 2000-0456 Tillgänglig på www.ssm.se

Strålsäkerhetsmyndighetens perspektiv

Bakgrund

Reaktortankstål påverkas av neutronbestrålning så att omslagstemperaturen, omslag från sprött till segt brott, ökar och att segheten i det sega området minskar med ökad grad av bestrålning. För att kunna prediktera framtida försprödningsgrader har så kallade trendkurvor utarbetats med vars hjälp en förväntad framtida omslagstemperatur kan beräknas bl.a. beroende på reaktortankmaterialets sammansättning och erhållen fluens. För att verifiera dessa antaganden finns också provstavar placerade i tanken som vid vissa tidpunkter tas ut för provning, så kallad surveillance-provning. Under ett antal år har det dock framförts farhågor att reaktortankmaterial med höga nickel- och manganhalter löper risk för en snabbt ökande försprödningsgrad i slutet av livstiden, vilket inte förutspås av befintliga trendkurvor. På senare tid har det framförts teorier om att denna effekt kan orsakas av så kallade instabila matrisdefekter vilka initialt påverkar de mekanismer som bidrar till försprödningen av reaktortankstålet. Forskningsuppdraget syftade till att studera förekomsten av instabila matrisdefekter i material som är representativt för de svenska kärnreaktorerna.

Resultat

Studien har fokuserat på undersökningar av låglegerade stål i de svenska reaktortankarnas svetsar. I studien inkluderades totalt fem olika materialtillstånd motsvarande fem olika bestrålningsnivåer av samma svetsgods. Experiment, där materialens hårdhet använts som analyserad egenskap, samt hög-förstorande mikrostrukturella undersökningar har genomförts där slutsatsen, baserat på hårdhetsmätningarna och avsaknaden av återhämtning av egenskaperna, är att icke-stabila matrisdefekter inte kan detekteras i de låglegerade svetsgods med höga nickel-, manganoch kiselhalter som är karaktäristiska för de svenska reaktorerna. De mikrostrukturella undersökningarna som genomförts med hjälp av atom-sondstomografi, APT, har bidragit till förståelse avseende storlek, storleksfördelning och upplösning av de kluster som bildats i materialets mikrostruktur under neutronbestrålning av svetsgodsen. Klustren består huvudsakligen av nickel, mangan, kisel och koppar.

Relevans

Resultaten ger ökad insikt i åldringsbeteendet hos låglegerade svetsgods med höga nickel-, mangan- och kiselhalter som är karaktäristiska för de svenska reaktorerna. Studien har genererat viktig kunskap och information som SSM kan använda vid framtida bedömningar i samband med långtidsdrift (LTO) av befintliga reaktorer.

Projektinformation

Kontaktperson SSM: Elena Calota Referens: SSM2017-396 / 7030141-00

SSM 2023:06



Författare: Magnus Boåsen, Kristina Lindgren, Pål Efsing

2023:06

Instabila matrisdefekter i bestrålat reaktortankstål med höga nickeloch manganhalter

Innehåll

1.	Sammanfattning	2
2.	Bakgrund och syfte	3
3.	Genomförande och resultat	6
4.	Slutsatser	13
5.	Erkännande	14
6.	Journalpublikationer	15
7.	Referenser	16

1. Sammanfattning

Låglegerade stål som används i nukleära tillämpningar åldras på grund av långtidsdrift vid förhöjd temperatur (termisk åldring), och i tillämpliga fall där komponenterna befinner sig i närheten av reaktorhärden även neutroninducerad åldring. Åldringen av materialet medför att materialens mekaniska egenskaper förändras med tiden varpå motståndskraften mot degradering och/eller tänkbara belastningar potentiellt försämras. För att följa upp detta har merparten av de västerländska lättvattenreaktorerna s.k. surveillanceprogram där de mekaniska egenskaperna avseende reaktortankstål följs upp regelbundet. De bakomliggande orsakerna till de försämrade mekaniska egenskaperna har studerats utförligt, men på grund av naturen finns det fortfarande ett antal obekanta aspekter att värdera. En av dessa är det faktum att det initiala beteendet i samband med drifttagningen ofta innehåller en relativt sett större förändring än vad som är fallet under senare delar av driften, då ett mer linjärt och långsammare degraderingsförlopp inträder efter en relativt sett kort tidsperiod liknande vad som är fallet för många andra tidsberoende degraderingsmekanismer. Det har spekulerats i att det initiala beteendet skulle orsakas av s.k. icke-stabila matrisdefekter vilka av naturen skulle vara mycket små, endast enstaka vakanser och/eller interstitiellt lösta atomer, vilka har en sannolikhet att annihileras vid temperaturer vid eller strax över normal drifttemperatur för reaktorerna.

Denna rapport ämnar ge en översikt och sammanfattning av de studier som gjorts avseende frågeställningen kring eventuell förekomst av icke-stabila matrisdefekter i de svetsgods som är representativa för de svenska kärnreaktorerna, och mikrostrukturella undersökningar i låglegerade reaktortanksstål som genomförts inom projektet *SSM2015-1876 Icke-stabila matrisdefekter* vid Enheten för Hållfasthetslära vid KTH och Mikrostrukturfysik vid Chalmers. Projektet har drivits som ett fristående forskningsprojekt, ej direkt kopplat till doktorandprojekt, vid dåvarande Institutionen för Hållfasthetslära, KTH. Adj. Professor Pål Efsing har varit handledare och Dr. Magnus Boåsen/KTH och Dr Kristina Lindgren/Chalmers som utförare av arbetet.

Experiment, där materialens hårdhet använts som analyserad egenskap, samt högförstorande mikrostrukturella undersökningar har genomförts där slutsatsen, baserat på hårdhetsmätningarna och avsaknaden av återhämtning av egenskaperna, är att icke-stabila matrisdefekter inte kan detekteras i de låglegerade svetsgods med höga nickel-, mangan- och kiselhalter som är karaktäristiska för de svenska reaktorerna. De mikrostrukturella undersökningarna som genomförts med hjälp av atomsondstomografi, APT, har bidragit till förståelse avseende storlek, storleksfördelning och upplösning av de kluster som bildats i materialets mikrostruktur under neutronbestrålning av svetsgodsen. Klustren består huvudsakligen av nickel, mangan, kisel och koppar.

2. Bakgrund och syfte

De svenska kärnkraftverk som för närvarande är i drift, 6 stycken, uppfördes med start under slutet av 1970-talet och drifttagning under första halvan 1980-talet. Detta innebär att det föreligger stora likheter, framförallt tillverknings- och materialvalsmässigt mellan de 6 stationerna, även beaktat att det finns såväl kokvatten- som tryckvattenreaktorer i Sverige. För att upprätthålla säker och stabil drift vid kraftverken har man utarbetat planer för långtidsdrift, LTO. I dessa planer ingår en omfattande hantering av de använda materialens åldrings- och degraderingsbeteende med hänsyn till den påverkan som den dagliga driften medför. Merparten av de effekter och mekanismer som identifierats avseende åldring och degradering förekommer och beaktas vid samtliga kraftverk. Syftet med arbetet kring LTO är på ett konsistent, transparant och väl genomarbetat sätt visa att man kan upprätthålla kylning av reaktorhärden och den strukturella integriteten i de delar av reaktorsystemen som ansluter till reaktortanken, Reactor Pressure Vessel – RPV, och dessa primära hjälpsystem, kallat RCPB – Reactor Coolant Pressure Boundary samt visa att det föreligger lämpliga program för att bedöma och hantera såväl kända som ännu ej identifierade fenomen och mekanismer. De systemdelar som ingår i det s.k. djupförsvaret, där ett antal lager av säkerhetssystem samverkar till att uppnå de krav som ställs på driften från ett regulativt perspektiv dvs säkerhetsrelaterade systemdelar, hanteras inom ramen för LTO-programmen. I analyserna ingår att fastställa hur olika strukturer, systemdelar och komponenter påverkas av driften, såväl direkt via spänningsanalyser som indirekt via analyser av förändringar avseende materialegenskaper beroende på förfluten drifttid, ett åldringshanteringsprogram.

Reaktortanken är en av de mest vitala komponenterna i ett sådant åldringshanteringsprogram. Dels då komponenten är svår att byta ut och därigenom har ett stort värde avseende livslängdsanalyser, dels för att den är kritisk ur perspektivet att upprätthålla kylbarheten av härden med avseende på drift i samband med störningar eller skador. RPV påverkas under drift såväl av termisk åldring, dvs långvarigt utsättande av materialet för förhöjd temperatur, som neutronbestrålning via neutroner som bildas i härden under driften.

Sedan starten av drift vid de svenska kärnkraftverken finns det ett uppföljningsprogram avseende hur de materialen påverkas av driften som innehåller provstavar av relevanta material som utsätts för den aktuella miljön i närheten av härdområdet i reaktorerna kallat "surveillanceprogram" [1]. Dessa fastställs individuellt för varje reaktor och uppdateras löpande när ny kunskap finns tillgänglig. Syftet bakom surveillanceprogrammen är att följa upp förändringar avseende materialens egenskaper och visa att tillräckliga marginaler föreligger för de förekommande belastningarna under alla tänkbara belastningsfall. I och med den nuvarande trenden att livslängden för reaktorerna ökas relativt ursprungligen antagna förutsättningar kan dessa program behöva revideras samt ytterligare kunskap byggas kring såväl utfallet avseende drifttidens påverkan på de mekaniska egenskaperna, som vilka mekanismer som påverkar dessa [2].

Vid neutronbestrålning av metalliska legeringar i kärnreaktorer uppstår en drivkraft för mikrostrukturella förändringar i materialet på grund av interaktionen mellan neutroner och metallgittret. Dessa förändringar uppstår i form av nanometerstora kluster av legeringsämnen, även kallade agglomerat, bildandet av dislokationer och matrisdefekter såsom ansamlingar av interstitialer eller vakanser. Det som benämns matrisdefekter har föreslagits att vidare delas upp i stabila och icke-stabila matrisdefekter där båda typerna bildas vid bestrålning med skillnaden i att den ena är stabil vid reaktorns driftstemperatur och den andra inte är det, d.v.s. den både bildas och upplöses vid de driftsbetingelser som råder. Dessa mikrostrukturella förändringar leder i regel till en härdning av materialet, vilket i sin tur ger en försprödning och i förlängningen potentiellt ett minskat driftsfönster för reaktorerna i termer av tryck och temperatur, se exempel i figur 1.



Figur 1. Exempel av inverkan av bestrålning på slagseghet och omslagstemperatur för ferritiska stål. Pilen markerar förändring som uppstår på grund av ökande neutronbestrålning [3]. Figuren återanvänd med tillstånd från ASTM.

Den försprödning som uppmäts och resulterar i båda de effekter som ses i figur 1 korrelerar väl med den resulterande härdningen av materialet på grund av uppkomsten av de felbyggnader i metallgittret som anges ovan. Den relativa sänkningen av segheten av materialet följs av en ökning av hårdheten med ökande neutrondos.

I en studie av Odette m.fl. [4] undersöktes låglegerade stål av typen A533B, vilket är ett vanligen förekommande tryckkärlstål i plåtform för nukleära applikationer, som utsatts för olika nivåer av bestrålningsintensitet (flux) med hjälp av hårdhetsprovning samt värmebehandlingar (eng. post-irradiation annealing, PIA). I studien uppdagades en skillnad mellan olika fluxnivåer i materialets återhämtning vid värmebehandling, denna skillnad tillskrevs icke-stabila matrisdefekter som teoriserades bestå av vakansansamlingar. De icke-stabila matrisdefekterna föreslogs ha två betydande effekter, dels att härda materialet genom att förhindra dislokationsrörelsen, dock inte till samma grad som de större agglomeraten, dels att sänka den bestrålningsförstärkta diffusionen som bildar agglomerat. Eftersom denna typ är instabil vid reaktorns driftstemperatur (~300 °C) är dess bildande fluxberoende. I två studier av Chaouadi och Gérard [5, 6], har undersökningar gjorts om denna typ av defekter kan existera i andra typer av låglegerade stål. Chaouadi och Gérard kunde inte dra slutsatsen att icke-stabila matrisdefekter existerade i de material som de undersökte. Detta främst genom att ingen återhämtning av materialets hårdhet skedde efter värmebehandling vid 345 °C och 350 °C, vilket borde skett om defekter som upplöses vid reaktorns driftstemperatur existerade.

I de svenska reaktortankarna som tillverkats av Uddcomb AB har svetsgodset en karaktäristisk kemisk sammansättning med höga halter av kisel, mangan och nickel. Detta resulterade i mycket goda s.k. beginning of life-egenskaper för de nämnda svetsskarvarna med omslagstemperaturer mellan segt och sprött brott, en egenskap ferritiska och bainitiska stål uppvisar, långt under acceptanskriterier vilka ofta är långt under -20°C. Denna egenskap påverkas av driften såtillvida att omslagstemperaturen ökar med ökande bestrålningspåverkan. Försprödningen av reaktortankarnas svetsar till följd av bestrålning följs upp med de så kallade surveillance-kapslarna som tas ur reaktorerna på utsatta intervall och materialet inuti provas. Ringhals AB har även låtit genomföra accelererad bestrålning av material i Haldenreaktorn för att undersöka försprödningens effekter vid höga stråldoser och högre bestrålningsintensitet än vad som förekommer i de svenska reaktorerna. En del i att förstå försprödningen har varit att undersöka de mikrostrukturella förändringar som bestrålningen vid reaktorrelevanta förhållanden medför.

Studien som gjorts inom ramen för projektet har helt och hållet fokuserat på undersökningar av låglegerade stål i de svenska reaktortankarnas svetsar. Undersökningarna i detta projekt har riktats mot förekomsten av icke-stabila matrisdefekter samt mikrostrukturella undersökningar av bestrålningsinducerade kluster av legeringsämnen i surveillance-material och i material från de accelererade bestrålningarna i Haldenreaktorn.

Arbetet i projektet har resulterat i tre journalpublikationer. Arbetet har utförts genom samarbete med forskare vid Chalmers tekniska högskola samt genom nordiskt samarbete med VTT i Finland.

3. Genomförande och resultat

Utifrån de observationer som gjorts av Odette m.fl. [4] verkar de icke-stabila matrisdefekterna härdande på materialet, detta medger ett tillvägagångsätt där värmebehandlingar kombinerat med hårdhetsprovning kan användas för att undersöka förekomsten av dem. Hårdhetsprovning är fördelaktigt eftersom metoden inte kräver stora mängder material för att ge repeterbara och tillförlitliga resultat. Denna metod är även den som Odette m.fl. använde sig av i deras studie där de identifierade de icke-stabila matrisdefekterna.

I studien inkluderades totalt fem olika materialtillstånd motsvarande fem olika bestrålningsnivåer av samma svetsgods. De bestrålningsnivåer uttryckt i fluens som undersökts samt vid vilken anläggning materialet bestrålades framgår av Tabell 1. Provbitarna kapades till en tjocklek om 2 mm och materialets hårdhet innan värmebehandling mättes upp över hela provbitens yta eftersom svetsars mikrostruktur har en tendens att påverka materialets egenskaper så att hårdheten varierar med position. Detta tillvägagångsätt gör att hårdheten mellan värmebehandlingarna kan jämföras med en intilliggande mätning som gjordes innan värmebehandling, vilket gör att effekten av värmebehandlingen kan sorteras ut på ett systematiskt vis. Figur 2 illustrerar hur hårdhetsintrycken placerades över vtan på provbitarna. Flera värmebehandlingar vid varje temperatur genomfördes för att kunna studera eventuella förändringsförlopp i hårdheten och hur dessa skulle utvecklas med ökande värmebehandlingstid. Värmebehandlingarna genomfördes vid 330 °C, 360 °C och 390 °C i ackumulerad tid i upp till 30 timmar i en rörugn trycksatt med helium för att minimera oxidbildning på provbitarna. Provbitarna polerades efter varje värmebehandling för att helt undvika effekten av ytoxid vid hårdhetsmätningen. För varje temperatur användes en ny provbit. Hårdhetsprovningen genomfördes med en Struers Duramin A300 hårdhetsprovare vid rumstemperatur med en Vickersintryckare enligt HV5. Provningen följde standarden ASTM E384.

Beteckning	Bestrålad vid	Flux / n/s/cm ²	Fluens n/cm ²
SO	Obestrålad	0	0
S4.6	Ringhals surveillance	0,15	4,56
H2.0	Halden	2,31	2,00
H2.8	Halden	3,25	2,81
H6.4	Halden	3,81	6,35

Tabell 1. Översikt över materialen som inkluderades i studien.



Hårdhetsintryck före värmebehandling
Hårdhetsintryck mellan värmebehandlingar

Figur 2. Illustration av hårdhetsintryck över provbitsytan. Siffrorna indikerar vilken värmebehandling som intrycken följer, d.v.s. 0 indikerar att intrycken gjorts före värmebehandling och 1-8 efter olika värmebehandlingssteg. Figur från [7], återanvänd med tillstånd från Elsevier under licensnummer 5231780873848.

Den bestrålningsinducerade hårdheten som mättes upp i studien presenteras i Figur 3. Hårdheten i de undersökta provbitarna faller på vad som kan tolkas vara samma trendlinje, d.v.s. en snabb initial uppbyggnad av hårdheten, följt av en lägre, linjär, härdningstakt något som observerats och föreslagits i andra studier av t.ex. Efsing m.fl. [8] och Miller m.fl. [9].



Figur 3. Bestrålningsinducerad hårdhet som funktion av bestrålningen i termer av fluens. Figur från [8], återanvänd med tillstånd från Elsevier under licensnummer 5231780873848.

I Figur 4-6 presenteras en normerad hårdhet mot värmebehandlingstid för de temperaturer som inkluderats i studien. Det kan tydligt synas att värmebehandlingen inte har någon effekt på hårdheten för de lägre temperaturerna, 330 °C i Figur 4 och 360 °C i Figur 5. För den högsta temperaturen, 390 °C i Figur 6, kan det ses att hårdheten sjunker för de material som bestrålats vid den högre flux-nivån i Haldenreaktorn, men inte i surveillance-materialet från Ringhals. Ändringen i hårdhet som skedde vid hög-fluxbestrålningarna tillskrevs

inte till icke-stabila matrisdefekter. Detta eftersom i det fall icke-stabila matrisdefekter existerat i materialet skulle dessa börja upplösas även vid de lägre temperaturerna och en motsvarande nivå av hårdhetsändring skulle synas även där. Definitionen av icke-stabila matrisdefekter säger att de ska både skapas och upplösas vid reaktorns driftsbetingelser. Temperaturerna som valts för värmebehandling ligger väl över reaktorns driftstemperatur för att påvisa eventuella skillnader i återhämtningen av hårdhet vid temperaturer strax över reaktorns driftstemperatur. Orsaken till hårdhetssänkningen som åskådliggjordes i Figur 6 lät sig därför inte tolkas utifrån de experiment som ingick i studien. I den publikation som skrevs av Boåsen m.fl. [7] spekulerades det att de bestrålningsinducerade klustren, som tidigare observerats i materialet, kan ha bildats med en annan storlek i hög-fluxbestrålningarna än de i surveillance-materialet och att dessa möjligen kunde lösas upp vid en lägre temperatur, men inga definitiva slutsatser kunde dras kring orsaken till hårdhetsåterhämtningen i Figur 6.



Figur 4. Normerad hårdhet som funktion av värmebehandlingstid vid 330 °C. Figur från [7], återanvänd med tillstånd från Elsevier under licensnummer 5231780873848.



Figur 5. Normerad hårdhet som funktion av värmebehandlingstid vid 360 °C. Figur från [7], återanvänd med tillstånd från Elsevier under licensnummer 5231780873848.



Figur 6. Normerad hårdhet som funktion av värmebehandlingstid vid 390 °C. Figur från [7], återanvänd med tillstånd från Elsevier under licensnummer 5231780873848.

Arbetet i projektet gav upphov till ett forskningssamarbete med en forskargrupp vid Chalmers i Göteborg för att undersöka materialets mikrostruktur med hjälp av atomsondstomografi (eng. *atom probe tomography*, APT). Den mikrostrukurella undersökningens syfte var till viss del att undersöka upplösningen av de bestrålningsinducerade klustren som spekulativt tillskrevs vara orsaken till hårdhetsminskningen vid 390 °C, men även att generellt undersöka upplösningsbeteendet hos klustren vid högre temperaturer. På grund av beskaffenheten hos atomsondsdata kan den inte användas för att undersöka förekomsten av ickestabila matrisdefekter i det avseende som de identifierats av Odette m.fl. [4] eftersom de i teorin består av en liten mängd ansamlade vakanser. Atomsondstomografi är däremot väl lämpad för att undersöka variationer i legeringsämnen på en längdskala från under en nanometer upp till ett par hundratals nanometer, vilket är lämpligt för storleken hos bestrålningsinducerade kluster av legeringsämnen. I den analyserade volymen, som är nålformad och typiskt 50x50x500 nm³ stor, får man nämligen information, atom för atom, om både typ av atom, och dess position. Däremot kan man inte se avsaknad av atomer, alltså vakanser.

I den mikrostrukturella studien undersöktes materialen före och efter värmebehandling i kombination med hårdhetsmätningar. Detta för att undersöka antalstätheten samt storleksfördelningen av kluster i mikrostrukturen och i vilken utsträckning de verkar härdande på materialet och hur härdningen förändras vid upplösningen av klustren vid värmebehandling.

I Figur 7 ses storleksfördelningen och antalstätheten i bestrålat tillstånd för de undersökta materialen. Det kan noteras att hög-fluxbestrålningarna från Haldenreaktorn resulterade i mindre kluster fördelade med en högre antalstäthet. I Figur 8 har klustren avbildats utifrån klusterinnehåll där Ni, Mn, Si och Cu har separerats för samma materialvolym, det kan tydligt ses att de bestrålningsinducerade klustren har högt innehåll av Ni och Mn.



Figur 7. Vänster: Storleksfördelning hos de bestrålningsinducerade klustren. Höger: Antalstäthet hos klustren. Figurer från [8], återanvänd med tillstånd från Elsevier under licensnummer 5231781166174.



Figur 8. Vänster: Illustration av klustren i de olika bestrålningsnivåerna som undersökts och legeringsämnenas fördelning i klustren. Samtliga Ni, Mn, Si och Cu-atomer visas var för sig, i en 10 nm tjock skiva ur en analys. Höger: Förstoring av en analyserad volym i högfluxbestrålat material, där detaljbilder på några kluster finns i förstoring. Figurer från [10], återanvänd med tillstånd från Elsevier under licensnummer 5231781166174.

Vidare studier av värmebehandling vid högre temperaturer i kombination med mikrostrukturella studier gjordes på surveillance-materialet S4.6 och det högst bestrålade högfluxmaterialet H6.4. Hårdhet mättes kontinuerligt under värmebehandlingen, och atomsondstomografi genomfördes för många av materialen, efter värmebehandlingens slut. Resultat för de vidare hårdhetsmätningarna kan ses i Figur 9. Det man kan se i figuren är att hårdheten för det högfluxbestrålade materialet är helt återhämta efter 24 h vid 445°C. Samma värmebehandling av surveillancematerialet resulterade i delvis återhämtning.



Figur 9. Hårdhetsmätningar av a) högfluxbestrålat material och b) surveillancematerial. Värmebehandlingarna är gjorda vid 390, 400 och 445°C. Hårdheten är normerad så att 0 motsvarar obestrålad hårdhet. Figur från [11], som publicerats med CC BY 4.0 licens.

Tabell 2. Egenskaper för kluster från atomsondsdata. De översta 6 materialen är högfluxbestrålat, först det ej värmebehandlade och sedan värmebehandlade vid 390, 400, 410, 425 och 455 °C enligt namnen. De två understa materialen i tabellen är surveillancematerial, ej värmebehandlat samt värmebehandlat vid 445 °C. Data från [11].

Material	Genomsnittlig klus- terdiameter (nm)	Antalstäthet (10 ²³ /m ³)	Volymsfraktion kluster (%)
H6.4	1.8±0.1	5.9±0.8	0.37
H6.4-390	1.8±0.1	6.3±1.6	0.41
H6.4-400	1.6±0.1	5.6±0.7	0.25
H6.4-410	1.5±0.2	0.6±0.2	0.02
H6.4-425	1.4±0.2	0.2±0.04	0.007
H6.4-455	1.3±0.3	0.06±0.04	0.001
S4.6	2.4±0.1	3.2±1.1	0.50
S4.6-445	2.5±0.1	1.6±0.8	0.31

I Tabell 2 finns en sammanställning av klusteregenskaperna för de två materialen efter värmebehandling, beräknade från atomsondsdata. För det högfluxbestrålade materialet finns det i princip inga kluster kvar efter värmebehandling vid 455 °C. Detta förklarar den återhämtade hårdheten i detta material. Vidare ser vi att anlöpning vid 390 °C inte resulterade i någon minskad storlek, antal, eller volymsfraktion av kluster. Därmed dras slutsatsen att minskningen i hårdhet som sågs i Figur 6 och 9 vid anlöpning vid denna temperatur beror på upplösning av matrisdefekter som är stabila vid temperaturer under 390 °C. Vidare kan vi i Tabell 2 se att värmebehandling av surveillancematerialet vid 445 °C i 24 h inte resulterade i total upplösning av kluster, vilket förklarar att hårdheten inte är helt återhämtad i Figur 8.

Det är intressant att notera att klustren i surveillancematerialet verkar lösa upp sig långsammare än dem i det högfluxbestrålade materialet. En del av anledningen till detta skulle kunna vara att de från början är större, de har en medelstorlek på 2.4 nm istället för 1.8 nm. Ytterligare en anledning till detta skulle kunna vara just matrisdefekterna, som skulle kunna öka diffusionen i materialet. På så sätt skulle diffusionen, alltså hur snabbt atomerna kan röra sig från klustren, göra upplösningen snabbare i det högfluxbestrålade materialet.

4. Slutsatser

En definitiv slutsats som kan dras från arbetet med värmebehandlingarna och hårdhetsmätningarna är att inga tecken har observerats på förekomsten av icke-stabila matrisdefekter i de material som inkluderats i studien. En påföljande slutsats som med god säkerhet kan dras från detta är att under de betingelser som råder i de svenska reaktorernas svetsar (temperatur och bestrålningsintensitet), föreligger låg sannolikhet till att icke-stabila matrisdefekter ska bildas och bidra till försprödning. Detta bygger på att de svenska reaktortankarna är tillverkade enligt samma svetsspecifikation och har en väldigt likartad legeringssammansättning samt att bestrålningsintensiteten i samtliga reaktorer inte är tillräckligt hög för att bilda denna typ av defekter, bestrålningsintensiteten är markant lägre i samtliga svenska reaktorer än i Haldenreaktorn.

Från de mikrostrukturella undersökningar som gjorts med hjälp av atomsondstomografi kan det entydigt sägas att det bildas kluster/agglomerat av legeringsämnen som en följd av neutronbestrålningen från reaktorhärden. Vid högre bestrålningsintensitet (flux) verkar även stabila matrisdefekter bildas som bidrar till härdningen av materialet. I det högfluxbestrålade material inleds upplösningen av klustren vid en temperatur omkring 400 °C och är definitivt aktiv vid 410 °C och att vid 450 °C kan klustren lösas upp helt varpå den bestrålningsinducerade härdningen försvinner. I surveillancematerialet, som är mer likt det faktiska reaktortankstålet, observeras inga tecken på stabila matrisdefekter, och upplösningen av kluster är långsammare.

5. Erkännande

Arbetet som rapporteras med denna rapport har stötts av Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM, via projekt SSM2015-1876. Ansvariga för arbetet har varit Peter Ekström och Elena Calota. Författarna vill tacka för såväl det finansiella stödet som för de diskussioner som hållits med SSM i samband med avrapporteringar och relevanta möten där frågor kring åldring av låglegerade stål avhandlats. Författarna vill även framhålla samarbetet Teknologiska Forskningscentralen – VTT i Esbo, Finland och här speciellt Petteri Lappalainen, Arto Kukkonen, Johanna Lukin och Jari Lydman för ett gott samarbete vilket innehöll den mekaniska provningen avrapporterad här. Detta samarbete är en del av processen att säkerställa kunskaps- och kompetensöverföring till en yngre generation vilket stöds av Nordic Nuclear Safety Research – NKS, Svenskt Kärntekniskt Centrum – SKC samt NUGENIA+.

Slutligen vill författarna tack Ulla Ehrnsten – VTT, Mattias Thuvander – Chalmers och Per-Lennart Larsson – KTH för stimulerande diskussioner kring hårdhetsprovning, mikrostrukturer och åldring.

6. Journalpublikationer

Totalt har tre publikationer producerats utifrån de resultat som producerats inom projektet. En kort sammanfattning av dessa ges här.

1. Magnus Boåsen, Pål Efsing, Ulla Ehrnstén, On flux effects in a low alloy steel from a Swedish reactor pressure vessel, Journal of Nuclear Materials, 484, p.110-119, 2017

Denna artikel presenterar en experimentell studie där hårdheten mäts efter värmebehandlingar vid 330 °C, 360 °C och 390 °C för att undersöka förekomsten av ickestabila matrisdefekter. Material som utsatts för olika bestrålningsintensitet (flux) undersöks. Slutsatsen som drogs i studien är att icke-stabila matrisdefekter ej förekommer i de materialtillstånd som undersöktes.

- 2. Kristina Lindgren, Magnus Boåsen, Krystyna Stiller, Pål Efsing, Mattias Thuvander, Evolution of precipitation in reactor pressure vessel steel welds under neutron irradiation, Journal of Nuclear Materials, 488, p.222-230, 2017 Denna artikel presenterar en mikrostrukturell undersökning av samma material som artikel 1 där de bestrålningsinducerade klustren/agglomeraten analyseras i detalj. Resultat såsom antalstäthet, storleksfördelning och analys av klustrens sammansättning presenteras. Det uppdagas att de kluster som bildats i materialproverna som utsatts för den högre bestrålningsintensiteten bildar fler kluster av en mindre storlek än i de materialprover som utsatts för en lägre bestrålningsintensitet där det omvända råder.
- 3. Kristina Lindgren, Magnus Boåsen, Zaiqing Que, Krystyna Stiller, Pål Efsing, Mattias Thuvander, Post-Irradiation Annealing of High Flux Irradiated and Surveillance Material Reactor Pressure Vessel Weld Metal, Journal of Nuclear Materials, 562, 153586, 2022

I studien kombineras värmebehandlingar, hårdhetsmätningar och mikrostrukturella studier (atomsond) för att undersöka upplösningen av de bestrålningsinducerade klustren och förekomsten av stabila matrisdefekter. Det visas att det högfluxbestrålade materialet från Halden innehåller stabila matrisdefekter, till skillnad från surveillancematerialet. Klusterupplösningen är snabbare i det högfluxbestrålade än i surveillancematerialet.

7. Referenser

[1] P. Efsing, P. Ekström, Swedish RPV Surveillance Programs. in "ASTM Workshop on International Review of Nuclear Reactor Pressure Vessel Surveillance Programs", 2016, Chicago, IL, ASTM-STP 1603, ASTM International, West Conshohocken, 2018.

[2] A. Ballesteros, H. Hein, J. Roudén, P. Efsing, et.al., Reactor Pressure vessel surveillance, Nuclear Engineering International, Nov 2014, www.neimagazine.com

[3] P. Efsing, C. Jansson, T. Mager and G. Embring, Analysis of the Ductil-to-Brittle transition temperatire shift in a commercial power plant with high Nickel containing weld material, Journal of ASTM International, Vol 4, *#*7, 2007, paper id: JAI 100719.

[4] G.R. Odette, E.V. Mader, G.E. Lueas, W.J. Phythian, C.A. English, The effect of flux on the irradiation hardening of pressure vessel steels, Effects of Radiation on Materials: 16th International Symposium, ASTM-STP 1175, ASTM International, Philadelphia, 1993.

[5] R. Chaouadi, R. Gérard, Neutron flux and annealing effects on irradiation hardening of RPV materials, Journal of Nuclear Materials 418(1-3) (2011) 137-142.

[6] R. Chaouadi, R. Gérard, Confirmatory investigations on the flux effect and associated unstable matrix damage in RPV materials exposed to high neutron fluence, Journal of Nuclear Materials 437(1-3) (2013) 267-274.

[7] M. Boåsen, P. Efsing, U. Ehrnstén, On flux effects in a low alloy steel from a Swedish reactor pressure vessel, Journal of Nuclear Materials 484 (2017) 110-119.

[8] P. Efsing, J. Roudén, P. Nilsson, Flux Effects on Radiation Induced Aging Behaviour of Low Alloy Steel Weld Material with High Nickel and Manganese Content, Effects of radiation on nuclear materials 26 (2014) 119-134.

[9] M.K. Miller, A.A. Chernobaeva, Y.I. Shtrombakh, K.F. Russell, R.K. Nanstad, D.Y. Erak, O.O. Zabusov, Evolution of the nanostructure of VVER-1000 RPV materials under neutron irradiation and post irradiation annealing, Journal of Nuclear Materials 385(3) (2009) 615-622.

[10] K. Lindgren, M. Boåsen, K. Stiller, P. Efsing, M. Thuvander, Evolution of precipitation in reactor pressure vessel steel welds under neutron irradiation, Journal of Nuclear Materials 488 (2017) 222-230.

[11] K. Lindgren, M. Boåsen, Z. Que, K. Stiller, P. Efsing, M. Thuvander, Post-irradiation annealing of high flux irradiated and surveillance material reactor pressure vessel weld metal, Journal of Nuclear Materials 562 (2022).

Strålsäkerhetsmyndigheten arbetar pådrivande och förebyggande för att skydda människor och miljö från oönskade effekter av strålning, nu och i framtiden.

Du kan ladda ner våra publikationer från www.stralsakerhetsmyndigheten.se/publikationer. Om du behöver alternativa format som exempelvis lättläst, punktskrift eller Daisy, kontaktar du oss på e-post registrator@ssm.se.

Strålsäkerhetsmyndigheten

171 16 Stockholm 08-799 40 00 www.stralsakerhetsmyndigheten.se registrator@ssm.se

©Strålsäkerhetsmyndigheten