

УДК 621.039.531:669.15

Статистический анализ совместного влияния никеля, меди и фосфора на радиационное охрупчивание перлитных сталей

АСТАФЬЕВ А. А., МАРКОВ С. И., КАРК Г. С.

Опубликовано значительное число экспериментальных данных по радиационной стойкости стали, используемой при изготовлении элементов атомных энергетических установок. Однако полученные закономерности, как правило, не имеют общего характера и описывают только частные случаи влияния того или иного параметра на радиационную стойкость материала.

В последнее время сделаны попытки учесть взаимное влияние нескольких параметров на радиационную стойкость. Обнаружено [1], что при повышенной температуре облучения присутствие никеля и меди в феррито-перлитной стали 48ТС приводит к радиационному охрупчиванию. При достаточно низкой концентрации примесей отрицательное влияние никеля и меди не было обнаружено. В работе [2] указывается, что примеси типа фосфора значительно сильнее влияют на радиационное охрупчивание при повышенной температуре облучения, нежели при низкой ($50-80^\circ\text{C}$), причем при повышенной температуре никель понижает радиационную стойкость стали, усиливая, по-видимому, охрупчивающее воздействие фосфора.

Сведения об отрицательном влиянии меди и фосфора на радиационную стойкость стали содержатся и в ряде других работ, однако количественные оценки совместного влияния этих элементов и взаимосвязи их влияния с концентрацией никеля, к сожалению, отсутствуют.

Возможность такой оценки предоставляет многофакторный эксперимент. В настоящей работе сделана попытка моделирования такого эксперимента путем статистического анализа большого числа опубликованных данных о влиянии химического состава перлитных сталей на их радиационную стойкость.

Первичная информация собрана примерно по 200 источникам, преимущественно американским, английским и канадским специальным изданиям, посвященным проблемам реакторного материаловедения, а также по материалам международных конференций и симпозиумов*.

* В сборе и систематизации первичной информации участвовали В. А. Юханов, А. Н. Тарасова, В. А. Нечаев, Г. Ф. Прокошина.

Полный объем собранного материала составляет более 1000 опытов, в каждом зафиксировано от 10 до 30 факторов и от 5 до 15 выходных параметров.

Для решения поставленной задачи — оценки совместного влияния меди, фосфора и никеля на радиационное охрупчивание стали — были выбраны те опыты (всего 230), для которых указан химический состав стали (в том числе концентрации меди и фосфора), условия облучения (флюенс и температура) и характеристика радиационного охрупчивания — повышение температуры хрупковязкого перехода стали (ΔT_K) в результате облучения. Параметры термообработки стали не вводились в анализ в качестве факторов, однако выборка соответствовала примерно одному уровню этих параметров. Такие факторы, как тип реактора, спектр нейтронного потока, размеры заготовок для образцов, в этой задаче не учитывались, что обуславливало случайный разброс экспериментальных данных относительно построенной математической модели.

Ниже приведены максимальное, минимальное и среднее содержания легирующих элементов и примесей в химическом составе анализируемых сталей, %:

C . . .	0,26; 0,02; 0,18	P . . .	0,045; 0,004; 0,013
Si . . .	0,41; 0,11; 0,24	S . . .	0,05; 0,004; 0,019
Mn . . .	1,63; 0,40; 1,18	Cu . . .	0,35; 0,005; 0,19
Cr . . .	1,83; 0,02; 0,85	V . . .	0,09; 0,005; 0,04
Ni . . .	3,28; 0,01; 0,78	Al . . .	0,06; 0,02; 0,035
Mo . . .	0,6; 0,003; 0,30		

Флюенс быстрых нейтронов при $E > 1$ МэВ составляет $5 \cdot 10^{18} - 10^{20}$ нейтр./см², температура облучения $250-350^\circ\text{C}$. Для более низкой температуры облучения подобный анализ, по-видимому, следует проводить отдельно, поскольку по данным работы [2] и ряда других охрупчивание в этом случае подчиняется иным закономерностям.

Для определения характера влияния того или иного фактора на ΔT_K , построения эмпирических уравнений (уравнений регрессии), описывающих зависимость ΔT_K от факторов, а также для проверки значимости коэффициентов уравнений и адекватности статистических моделей использовали аппарат математической ста-

тики. Расчет статистических параметров проводили на ЭВМ М-220*.

Возможные математические модели строили в виде регрессионной зависимости

$$\Delta T_K = a_0 + \sum_{i=1}^n a_i x_i + \sum_{i=1}^n a_{ii} x_i^2 + \sum_{i,j=1}^n a_{ij} x_i x_j, \quad (1)$$

где x_i — влияющие факторы; a_i , a_{ij} — коэффициенты регрессии; $i, j = 1, 2, \dots, n$; $i \neq j$; n — число факторов.

Критерием сравнения различных моделей выбрали остаточную дисперсию экспериментальных значений ΔT_K относительно уравнения регрессии. Оптимальной, т. е. имеющей наименьшую остаточную дисперсию при наличии членов не выше второго порядка, оказалась статистическая модель вида

$$\Delta T_K = 110 - 1224 [C]^2 - 76 [Ni] + 129 [Cu] + 4543 [Ni] [P] + 164 [Ni] [Cu] - 10320 [Cu] [P] + 15,8F - 0,17T_{обл}, \quad (2)$$

где знак химического элемента в квадратных скобках означает его концентрацию; F — флюенс **, 10^{19} нейтр./см²; $T_{обл}$ — температура облучения, °С.

Полученное уравнение регрессии является значимым, поскольку оно уменьшает остаточную дисперсию в 4,26 раза, что превышает табличное значение критерия Фишера ($F = 1,60$) для данного числа экспериментов и определяемых коэффициентов при уровне значимости 0,99.

Проверка значимости отдельных коэффициентов регрессии показала, что коэффициенты при членах $[Mn]$, $[Si]$, $[Cr]$, $[Mo]$, $[S]$ незначимы или находятся на пределе значимости, поэтому в уравнение (2) они не включены.

Вывод о слабом влиянии этих элементов в основном согласуется с данными одного из наиболее детальных исследований воздействия легирующих элементов на радиационную стойкость железуглеродистых сплавов [3]. Авторы этой работы показали, что в случае облучения при

температуре 300—350° С изменение содержания марганца, хрома и молибдена не сказывается на чувствительности материала к радиационному охрупчиванию. Влияние марганца при такой температуре облучения не обнаружено также и в работе [4]. Относительно влияния молибдена В. И. Баданин и И. А. Разов [3] отмечают, что добавка ~0,2% молибдена повышает радиационную стойкость железуглеродистых сплавов, которая, однако, остается неизменной при дальнейшем увеличении концентрации молибдена до 1%. В уравнении (2) коэффициент при $[Mo]$ оказался незначимым, вероятно, потому, что подавляющее большинство анализируемых корпусных сталей содержали молибден в количестве, превышающем пороговое.

При анализе статистической модели особое внимание следует обратить на члены, характеризующие эффекты взаимодействия, т. е. $[Ni][P]$, $[Ni][Cu]$ и $[Cu][P]$. Первоначально проверялись различные возможные парные взаимодействия в модели: $[Ni][S]$, $[Cr][C]$, $[Ni][Cr]$, $[Ni][P]$ и т. д. Однако значимо уменьшают остаточную дисперсию, т. е. влияют на ΔT_K , только произведения $[Ni][P]$, $[Ni][Cu]$, $[Cu][P]$. Это означает, что влияние никеля на радиационную стойкость стали зависит от количества фосфора и меди в стали, причем даже характер этого влияния (повышение или понижение ΔT_K) может быть различным при разных концентрациях фосфора и меди.

Интересным является то обстоятельство, что учет эффектов взаимодействия никеля с фосфором и медью не только уменьшает остаточную дисперсию, но и существенно изменяет коэффициент при $[Ni]$, который без учета взаимодействий равен +47,0, а с их учетом меняет знак на противоположный и становится равным -76,0. Из этого следует очень важный вывод о том, что проявляющаяся в ряде экспериментов тенденция к повышению ΔT_K с увеличением концентрации никеля вызвана не собственным влиянием никеля, а представляет результат его взаимодействия с медью и фосфором и проявляется только при превышении их некоторых критических концентраций, таких, когда положительная сумма вкладов взаимодействий никеля с фосфором и медью превышает отрицательный вклад $[Ni]$ в ΔT_K .

К сожалению, этот результат нельзя пока сопоставить с опубликованными данными, поскольку практически отсутствуют сведения о систематическом изучении влияния никеля на радиационное охрупчивание корпусных сталей с достаточно низкой концентрацией фос-

* В расчете принимал участие Н. Н. Паничкин.

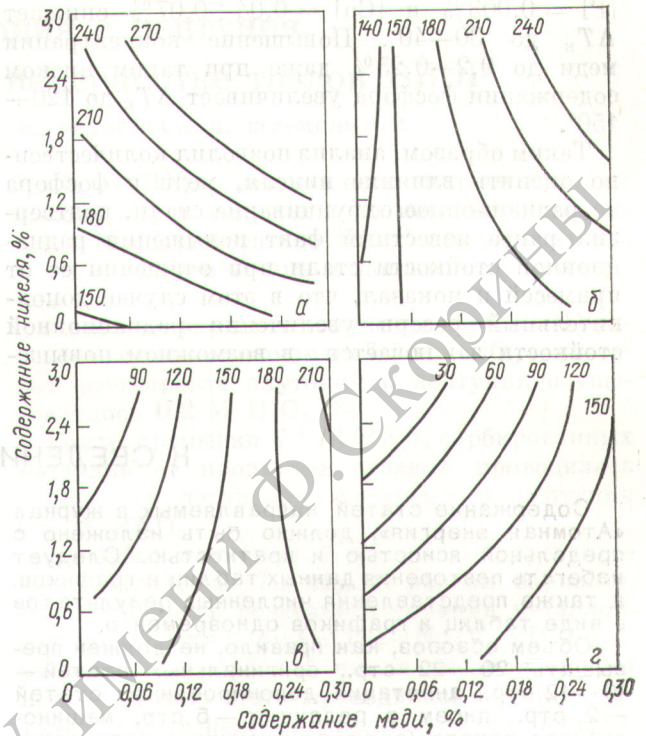
** В достаточно узком исследуемом диапазоне $0,5 \cdot 10^{19} - 10^{20}$ нейтр./см² влияние флюенса на ΔT_K с удовлетворительной точностью описывается линейной зависимостью. При построении модели для более широкого интервала значений флюенса целесообразно использовать более сложные зависимости, например приводимые в литературе $\Delta T_K \approx F^{1/n}$ или $\Delta T_K \approx \lg F + C$.

фора и меди. Существуют данные о влиянии никеля на поведение сталей с низкой концентрацией фосфора, но с обычным для промышленного металла количеством меди (0,2%). Так, повышение концентрации никеля в стали 15X2МФА с концентрацией фосфора менее 0,01% не усиливает радиационное охрупчивание [1] и является поэтому не только допустимым, но и желательным, поскольку повышает запас вязкости стали и ее прокаливаемость. В обзоре [5] отмечается, что для выяснения роли никеля в радиационном охрупчивании необходимо исследовать его влияние при низкой концентрации меди.

Полученное в результате статистического анализа уравнение (2) позволяет прогнозировать влияние никеля при одновременном снижении концентрации фосфора и меди в стали (примерно 30% анализируемых плавок содержали менее 0,01% фосфора и 0,1% меди). Видно, что с уменьшением [P] и [Cu] охрупчивающее влияние никеля уменьшается, становится нейтральным при некоторых критических значениях [P] и [Cu]. При концентрации примесей ниже критических значений повышение [Ni] снижает ΔT_K . Таким образом, анализ модели (2) позволяет предположить, что уменьшением концентрации меди и фосфора в стали ниже критических значений можно выявить положительное влияние самого никеля на радиационную стойкость и путем повышения его содержания снижать ΔT_K^* .

Все критические концентрации, в зависимости от требований, предъявляемых к стали (таких, как максимально допустимая величина ΔT_K , заданные пределы прочностных свойств и др.), могут быть определены методами нелинейного программирования и оптимизации.

Для наглядного представления совместного влияния никеля, меди и фосфора на радиационное охрупчивание стали построены двумерные сечения семимерной поверхности, соответствующей модели (2) (диаграммы радиационного охрупчивания), для фиксированных концентраций углерода, флюенса и температуры облучения. Концентрации элементов взяты по данным химического анализа промышленной плавки корпусной стали; флюенс и температура облучения были приняты равными соответственно 7×10^{19} нейтр./см² и 290 °С. На каждом сечении диаграммы радиационного охрупчивания пред-



Двумерное сечение модельной диаграммы радиационного охрупчивания корпусной стали (цифры у кривых соответствуют величине $\Delta T_K, ^\circ\text{C}$)

ставлены линии одинакового уровня ΔT_K в координатах [Ni] — [Cu] для концентрации фосфора 0,024; 0,015; 0,009 и 0,003%. Расчеты выполнены на ЭВМ М-220. Построенные сечения наглядно иллюстрируют основные закономерности взаимного влияния никеля, меди и фосфора на ΔT_K (см. рисунок). Видно, что при концентрации фосфора в стали 0,024% и выше (а) никель во всем изученном интервале концентрации увеличивает радиационное охрупчивание. При содержании фосфора 0,015% (б) никель усиливает охрупчивание стали только в случае концентрации меди выше 0,06—0,07%. При дальнейшем снижении концентрации фосфора (в) интервал концентрации меди, в котором наблюдается благоприятное воздействие никеля, расширяется и вместе с тем понижается абсолютная величина сдвига температуры хрупковязкого перехода ΔT_K . И, наконец, при концентрации фосфора 0,003% (г) практически во всем допустимом для данной стали диапазоне концентрации меди повышение содержания никеля вплоть до 3% понижает ΔT_K (тем эффективней, чем ниже концентрация меди). Повышение концентрации никеля до 2,0—2,5% при

* В настоящее время проводятся экспериментальная проверка и физическая интерпретация этого вывода.

$[P] = 0,003\%$ и $[Cu] = 0,04 \div 0,07\%$ снижает ΔT_K до $30-40^\circ$. Повышение концентрации меди до $0,2-0,25\%$ даже при таком низком содержании фосфора увеличивает ΔT_K до $120-150^\circ$.

Таким образом, анализ позволил количественно оценить влияние никеля, меди и фосфора на радиационное охрупчивание стали, подтвердил ранее известный факт повышения радиационной стойкости стали при очищении ее от примесей и показал, что в этом случае дополнительный резерв увеличения радиационной стойкости заключается в возможном повыше-

нии содержания никеля ($> 1,5-2,5\%$) в зависимости от концентрации меди и фосфора.

Поступила в Редакцию 19/III 1976 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Николаев В. А., Баданин В. И. «Атомная энергия», 1974, т. 37, № 6, с. 491.
2. Николаев В. А., Баданин В. И. «Изв. АН СССР. Металлы», 1975, № 2, с. 126.
3. Баданин В. И., Разов И. А. «Вопросы судостроения», 1975, вып. 19, с. 92.
4. Брумовски М. Автореф. дис., М., МИФИ, 1971.
5. Steele L. Neutron Irradiation Embrittlement of Reactor Pressure Vessel Steels. Vienna, IAEA, 1975, Techn. rep. Ser. 163.

К СВЕДЕНИЮ АВТОРОВ

Содержание статей, направляемых в журнал «Атомная энергия», должно быть изложено с предельной ясностью и краткостью. Следует избегать повторения данных таблиц и графиков, а также представления численных результатов в виде таблиц и графиков одновременно.

Объем обзоров, как правило, не должен превышать 20—22 стр., оригинальных статей — 10—12 стр., аннотаций депонированных статей — 2 стр., писем в редакцию — 5 стр. машинописного текста (включая рисунки с подписями, таблицы и библиографию).

При подготовке рукописей авторы должны руководствоваться следующими правилами:

1. Тексты (среди них обязательно должен быть первый машинописный экземпляр) и иллюстрированные материалы представляются в четырех экземплярах в окончательно отработанном для печати виде. Текст должен быть отпечатан через два интервала по 28—29 строк на одной стороне листа с полями не уже 4 см; рукописные вставки не допускаются.

2. Оформление текста (написание формул, выделение греческих и латинских, строчных и прописных букв, сокращение слов и т. д.) производится в соответствии с общими правилами, принятыми для научно-технических журналов. Трудноразличимые в рукописном обозначении буквы и знаки должны быть пояснены на полях.

3. Единицы всех физических величин должны быть обозначены в системе СИ.

4. Прилагаемые к тексту таблицы нумеруются по порядку, каждая таблица должна иметь заголовок.

5. Рисунки выполняются черной тушью на бумаге размером 15×20 см; фотографии должны иметь контрастные изображения, размер фотографий 12×18 см.

6. Подписи к рисункам прилагаются на отдельном листе. В тексте должны быть ссылки на рисунки.

7. Цитируемая литература приводится в конце работы общим списком с указанием:

а) для журнальных статей — фамилий и инициалов авторов, названия журнала, года, номера тома, выпуска и страницы;

б) для книг — фамилий и инициалов авторов, полного названия книги, места издания, издательства и года издания; для иностранных книг указываются также данные русского перевода;

в) для статей в сборнике — фамилий и инициалов авторов статьи, названия сборника, инициалов и фамилий составителя или редактора сборника, части, выпуска, места издания, издательства, года и страницы.

Ссылки на неопубликованные работы не допускаются.

8. К статьям, обзорам и письмам в редакцию должны быть приложены рефераты, составленные по правилам реферативных журналов, с четко сформулированной целью и результатами работы. Кроме того, рефераты к статьям и обзорам должны быть переведены на английский язык (в строгом соответствии с русским рефератом).

9. Названия всех работ, присылаемых в редакцию (статьи, обзоры, депонированные статьи и письма в редакцию) должны быть переведены на английский язык, фамилии и инициалы авторов даны в английской транскрипции.

10. Тексты и рисунки должны быть подписаны всеми авторами. Необходимо указывать точный адрес, номер телефона, фамилию, полное имя и отчество авторов.

Редакция посылает автору только одну корректуру, которую необходимо вернуть в предельно короткий срок.

Рукописи, не соответствующие этим требованиям, не рассматриваются. Отклоненные статьи не возвращаются.