

ТЕКСТУРНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ОПЫТНОЙ ПАРТИИ ТВЭЛЬНЫХ ТРУБ ИЗ СПЛАВА КТЦ-110

*В.М. Ажажа, Г.П. Ковтун, Д.Г. Малыхин, Н.И. Рагулина,
А.И. Стукалов, В.М. Грицина
(НТК "ЯТЦ", ИФТТМТ ННЦ ХФТИ, г.Харьков, Украина)
В.С. Вахрушева (ГТИ, г.Днепропетровск, Украина)*

Проведены рентгено-дифракционные исследования текстуры образцов оболочечных труб из сплава КТЦ-110 опытного производства ГТИ. Построены обратные полюсные фигуры, определены текстурные коэффициенты и индексы роста труб в осевом, тангенциальном и радиальном направлениях. Проведено сравнение с результатами исследований оболочечных труб серийного российского производства из сплава Э110. Установлено, что текстура труб производства ГТИ характеризуется высокой степенью направленности кристаллографических нормалей (0001) в радиальном направлении, что типично для серийной продукции всех предприятий-поставщиков оболочечных труб. Текстура труб производства ГТИ из сплава КТЦ110 в этой связи фактически не представляет исключения. Используемая в работе методика съемки дифрактограмм и их аналитическая обработка рекомендованы к применению при сертификации и аттестации циркониевых изделий производства Украины

ВВЕДЕНИЕ

В обеспечении надёжной работы реакторных труб из сплавов Zr-Nb значительную роль играет отслеживание и изучение связи работоспособности труб с их текстурой [1-12], научно-исследовательский опыт, оптимизация и контроль текстуры. И хотя контроль текстуры сегодня не входит в состав группы методик, определяющих степень соответствия реакторных изделий из циркония их традиционным техническим нормам [13-20], повышенная степень кристаллографической анизотропии циркония как металла с ГПУ-решёткой позволяет считать текстуру одной из наиболее важных характеристик, ответственных за эффективность эксплуатации циркониевых изделий в реакторах.

Вопрос систематических исследований текстуры реакторных труб на основе циркония сегодня возникает в связи с налаживанием их отечественного производства в Государственном трубном институте (ГТИ, Днепропетровск).

Исследования текстуры позволяют прогнозировать и оптимизировать физико-

механические свойства циркониевых изделий [5,11,21-25], их радиационный рост, размерную стабильность [1-4,6-21,26,27], стойкость к растрескиванию [28], предрасположенность к образованию гидридов определенной ориентации [29,30].

Как известно, сплав Zr-1.0%Nb, в частности, исследуемый сплав КТЦ110 и его штатный российский прототип Э110, применяется как материал оболочек твэлов. Оптимальная текстура твэльных труб имеет свою особенность. Так, практика эксплуатации показала [29], что твэлы в оболочках с радиальной текстурой (0001) работают более надёжно, чем твэлы с тангенциальной текстурой (0001). Трубы с радиальной текстурой (0001) имеют более благоприятное сочетание прочности и пластичности в реакторных условиях под нагрузкой и, к тому же, предрасположены к образованию гидридов благоприятной (окружной) ориентации, не вызывающих значительной потери пластичности материала труб при эксплуатации. На серийных оболочечных трубах плотность полюсов максимальна под углом $33\pm 3^\circ$ к радиальному

направлению и текстурный коэффициент f_T обычно не превышает 0,4.

Исследованию закономерностей текстурообразования в циркониевых сплавах уделяется большое внимание [31-34]. Установлено, что предшествующая термообработка влияет на соотношение значений плотности полюсов (0001) вдоль двух направлений: тангенциального и радиального. При этом на трубах и листах плотность полюсов (0001) вдоль направления прокатки имеет низкое и мало изменяющееся значение. На серийных канальных и оболочечных трубах, а также

лентах текстура характеризуется значением f_L от 0,02 до 0,2. (Среднее и наиболее часто встречающееся значение $f_L = 0,08 \pm 0,02$ [11,12]). С осью текстуры прокатанных циркониевых сплавов обычно совпадают направления [1010] и [1120].

В табл. 1 приведены сведения о текстурных коэффициентах некоторых циркониевых изделий из сплавов Э110 и Э125 производства России и канальных труб HWR CANDU из сплава Zr-2,5Nb, изготовленных по обычной схеме.

Таблица 1.

Текстурные коэффициенты базисных полюсов α - фазы в некоторых изделиях из циркониевых сплавов [11]

Изделие	Размер, мм	Сплав	Вид обработки	f_L	f_T	f_R	Литература
Технологический канал РБМК	Ø 88×4 мм	Э125 Zr-2,5%Nb	Отпуск 400°C, 24ч	0,03÷0,04	0,5	0,47	[3,4]
			Отжиг при 500°С, 5ч.	0,03	0,5	0,47	[4]
			То же	0,02÷0,1	0,40÷0,54	0,41÷0,56	[2-9]
			Отжиг при 600°С, 5ч	0,05	0,41	0,54	[4]
Канал №1 реактора СМ-2	Ø 98,2×6 мм	Э125 Zr-2,5%Nb	Отжиг при 500°C, 5ч	0,015	0,526	0,459	[10]
Канальная труба реактора HWR CANDU	Ø 102×4 мм	Zr-2,5%Nb	Обычная технология изготовления, отпуск 400°C, 24ч	0,03÷0,041	0,559÷0,616	0,347÷0,4	[1]
<u>Оболочки ТВЭЛОВ</u>	Ø 9,15×0,7 мм	Э110 Zr-1%Nb	Отжиг при 580°С, 3 ч	0,10	0,28÷0,40	0,50÷0,40	[3]
ВВЭР							
РБМК							
	Ø 9,15×0,7 мм	Э110 Zr-1%Nb	То же	0,1	0,26	0,64	[5]

Оболочки ТВЭЛОВ	Ø 9,15×0,7 мм	Э110 Zr-1%Nb	Отжиг при 580° С, 3 ч				
ВВЭР				0,10	0,28÷	0,50÷	[3]
РБМК	Ø 9,15×0,7 мм	Э110 Zr-1%Nb	То же	0,1	0,40 0,26	0,40 0,64	[5]
Лента	15×1 мм	Э110 Zr-1%Nb	20%хд	0,023	0,910	0,067	[10]

Одна из задач управления текстурой циркониевых труб состоит в том, чтобы достичь определённого соотношения пределов прочности разных геометрических направлений. И поскольку, как уже говорилось, благоприятное такое соотношение достигается заданием радиальной текстуры (0001), степень такой текстуры и соответствующие этому характеристики можно считать, хотя и условно, показателями качества изготавливаемых оболочек.

Целью настоящих исследований является определение текстуры оболочечных труб из сплава КТЦ110 производства ГТИ, включающее:

- построение полюсных фигур;
- оценку значений текстурных коэффициентов – средних квадратов проекций нормалей (0001) на тангенциальное, радиальное и осевое направление (f_T , f_R и f_L соответственно);
- определение индексов роста – текстурозависимых коэффициентов скорости радиационного роста (G_T , G_R и G_L) в соответствующих направлениях.

Задачей исследований является сравнение полученных результатов с характеристиками штатной трубы российского производства из сплава Э110.

ПРОВЕДЕНИЕ ИССЛЕДОВАНИЙ

Образцы для исследований. Предметом исследования являлись трубы Ø9,15×7,72мм из сплава КТЦ110 (Zr-1/0%Nb) трёх опытных партий производства ГТИ. Помимо оптимизации технологии прокатки, производителей интересует влияние состояния и деталей изготовления исходной трекс-трубы на качество конечного изделия. В табл. 2 приведены некоторые характеристики изделий.

Образцы предварительно изготавливались в виде пластин размером 12 ×12 мм, на одной из которых проводилось исследование радиальной проекции текстуры. Для исследования в других проекциях изготавливалась стопка из таких пластин. Исследуемые поверхности и срезы соответствующим образом обрабатывались. Погрешность ориентирования, связанная, в основном, с тангенциальным срезом, не превышала 3°.

Таблица 2.
Характеристика образцов твэльных труб диаметра 9.2 мм: конечное состояние трекс-трубы

№ образца	Состояние трекс-трубы: отжиг, охлаждение	Концентрация O ₂ , вес. %
1	T _{отж} = 950°С, охлаждение на воздухе	0.12-0.14
2	T _{отж} = 950°С, охлаждение в воде	0.13
3	T _{отж} = 950°С, охлаждение в воде	0.14

Техническая основа исследований. Исследование образцов проводилось рентгенографической съёмкой на дифрактометре ДРОН-4 со сцинтилляционным счётчиком в излучении CuK_α. Съёмки проводились по оптической схеме Брэгга - Brentано (поверхность образцов плоская; угол падения равен углу отражения) в режиме 5% -ной погрешности и 2%.-ной диспропорциональности рентгеновского пучка.

Методика исследований. Исследование текстуры образцов проводилось методом обратных полюсных фигур по измерениям интегральных интенсивностей I_{hkl} полнопрофильной диаграммы (для циркония – 22 линии). Для расчёта плотности полюсов P_{hkl} использовался стандартный набор интенсив-

ностей I_{ohkil} бестекстурного состояния материала. Расчёт производился по следующей формуле [35]:

$$P_{hkil} = (I_{hkil} / I_{ohkil}) / \sum (A_{hkil} \cdot I_{hkil} / I_{ohkil}),$$

где A_{hkil} – статистические весовые множители рефлексов.

Текстурный коэффициент – показатель, определяющий в линейном приближении изменение фундаментальных анизотропных характеристик материалов – механических, электро- и теплофизических (модулей упругости, к.т.р. и т.п.) – в избранном направлении изделия. Определяется он как средне-статистическое значение квадрата проекции нормалей (0001) на i -е направление съёмки:

$$f_i = \sum (A_{hkil} \cdot P_{hkil} \cos \alpha_{hkil}),$$

где α_{hkil} – углы между нормальными отражающих кристаллографических плоскостей и связанными с ними направлениями (0001).

По текстурным коэффициентам определяются, в частности, индексы роста G_x :

$$G_{xi} = 1 - 3f_i.$$

В настоящий момент в ИФТТМТ существует расчётно-прикладная база для достаточно высокого уровня исследования текстуры циркониевых материалов методом обратных полюсных фигур. Так, на основе технологии СВЧ-обработки канальных труб получены практически бестекстурные образцы, которые позволили путём специальной усредняющей съёмки предварительно получить стандартный набор эталонных интенсивностей. Сравнение этого набора с расчётными данными показало хорошее совпадение; последующее совместное усреднение наборов, согласно оценке, дало среднюю случайную погрешность по каждой интенсивности, равную 5%. Помимо этого, предварительно рассчитан математически набор статистических весовых множителей A_{hkil} для 22-х линий отражения циркония.

Компьютерная техника с использованием программы ПЭВМ на Фортране-77 и комплекта графических программ Графор [35,36] обеспечивает проведение расчетов и

построение обратных полюсных фигур, расчёта текстурных коэффициентов и индексов роста оболочек твэлов. Применяется вариант текстур-диаграммы векторного отображения и сопоставления текстурных коэффициентов [35], выполненный в тригональных координатах.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Исследованы трубы трех партий (№1,2,3); для каждой из труб построены полюсные фигуры, оценены текстурные коэффициенты и индексы роста в трех ортогональных направлениях (L – продольное, R- радиальное и T- тангенциальное). Обратные полюсные фигуры для труб производства ГТИ из сплава КТЦ и серийных оболочечных труб из сплава Э110 представлены на рис.1. Значения текстурных коэффициентов (f_L , f_R , f_T) и индексов роста (GL, GR, GT) для всех исследованных труб приведены в табл. 3.

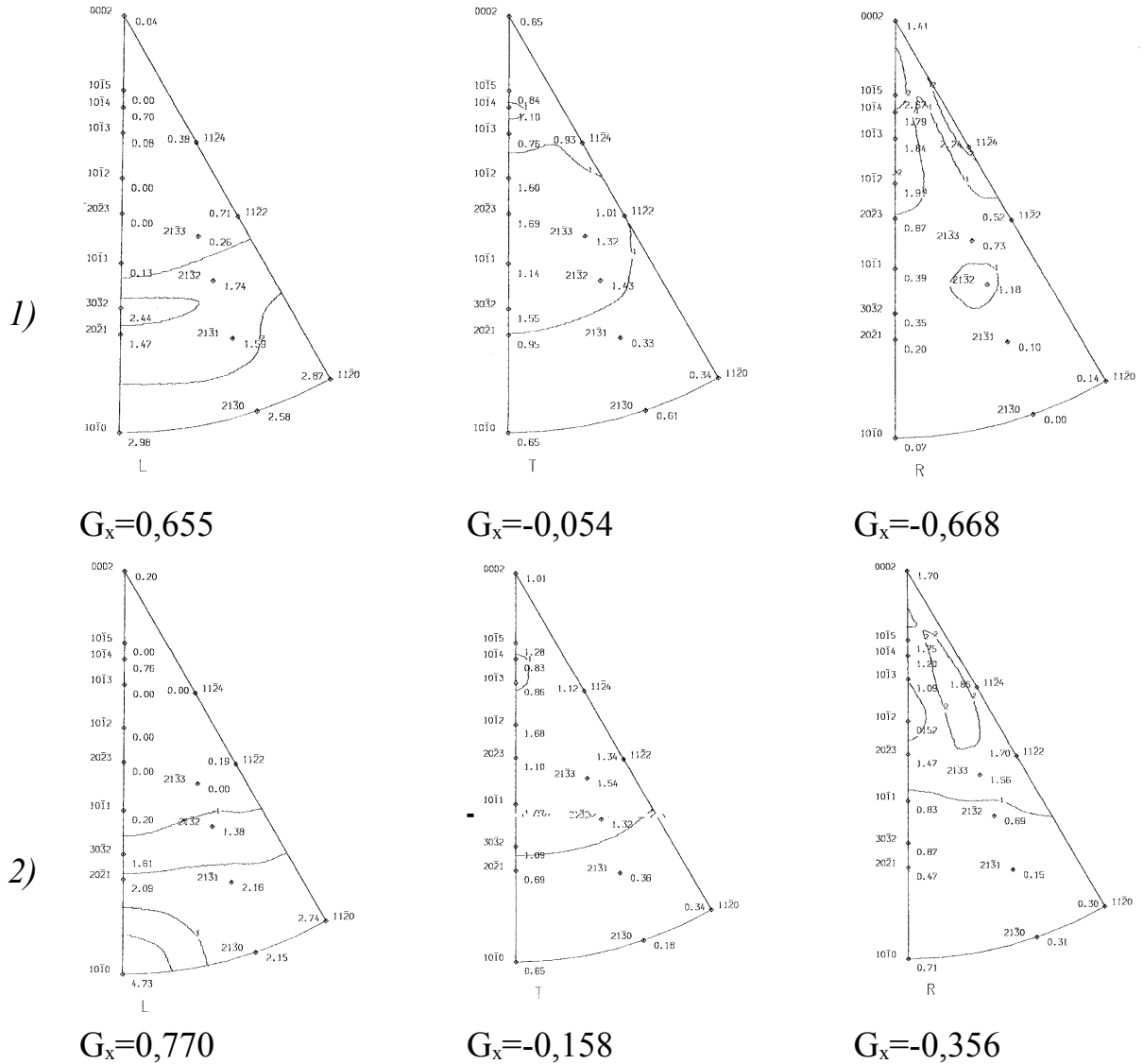
Из полученных результатов следует:

- Характер текстуры труб из сплава КТЦ110 производства ГТИ аналогичен текстуре труб из сплава Э110 производства России. Все исследованные трубы характеризуются низкой плотностью полюсов (0001) вдоль их оси. Значение текстурного коэффициента на всех трубах не превышает 0,12 (см. табл.2). Значения индекса роста вдоль оси труб производства ГТИ лежат в пределах от 0,66 до 0,84 (для сравнения, на серийных трубах из сплава Э110 $f_L=0,88$).
- Все исследованные трубы имеют преимущественно радиальную текстуру (наиболее высокую плотность полюсов (0001) в радиальном направлении). Значение текстурного коэффициента f_R на трубах производства ГТИ лежит в пределах от 0,45 до 0,56, что на верхнем пределе соответствует значению, полученному для серийных труб из сплава Э110 ($f_L=0,56$). При этом индексы роста в радиальном направлении отрицательны и равны -0,36 - 0,67.

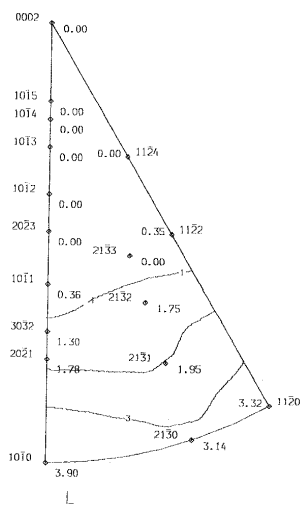
Таблица 3

Текстурные коэффициенты и индексы роста твэльных труб из сплава Э110 и КТЦ110 производства ЧМЗ (Россия), ГТИ и ЮТЗ (Украина)

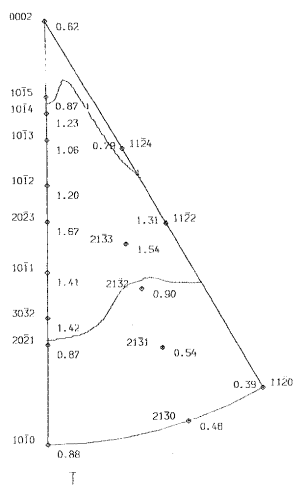
Предприятие-изготовитель	№	f_L	f_T	f_R	G_L	G_T	G_R
ЧМЗ (Россия)		0,04	0,40	0,56	0,88	-0,21	-0,67
ГТИ (Украина)	1	0,12	0,35	0,56	0,66	-0,05	-0,67
	2	0,08	0,39	0,45	0,77	-0,16	-0,36
	3	0,06	0,35	0,51	0,84	-0,06	-0,52



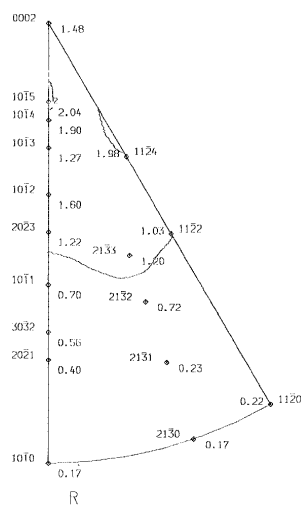
3)



$G_x=0,832$

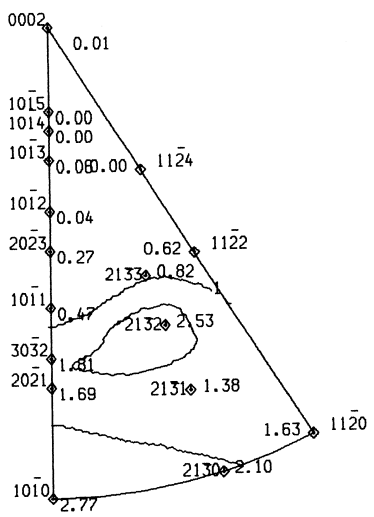


$G_x=-0,055$

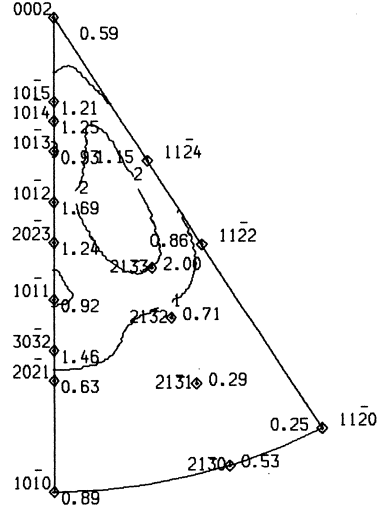


$G_x=-0,516$

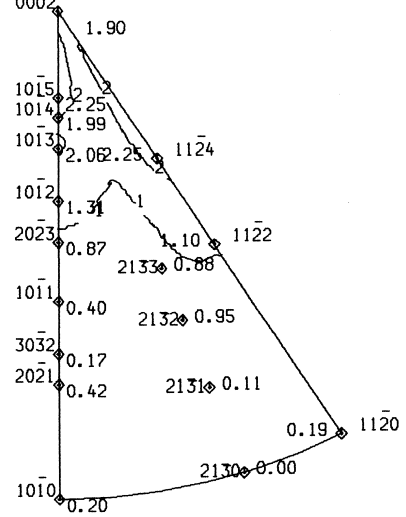
Рис.1. Обратные полюсные фигуры (0001) для оболочечных труб трех партий (№1, 2 и 3 из сплава КТЦ110 производства ГТИ в состоянии поставки в продольном (L); тангенциальном (T) и радиальном (R) направлении



$G_L=0,88$



$G_T=-0,21$



$G_r=-0,67$

Рис. 2. Обратные полюсные фигуры (0001) для серийных оболочечных труб из сплава Э110 штатной обработки в продольном (L); тангенциальном (T) и радиальном (R) направлении

- Текстульные коэффициенты труб из сплава КТЦ110 в тангенциальном направлении близки к 1/3 (от 0,35 до 0,39). При этом индексы роста имеют очень малое отрицательное значение (ни на одной из труб G_T не превышает -0,16)
- Положение данных на текстур-диаграмме для всех исследованных труб практически совпадает (рис.3).
-

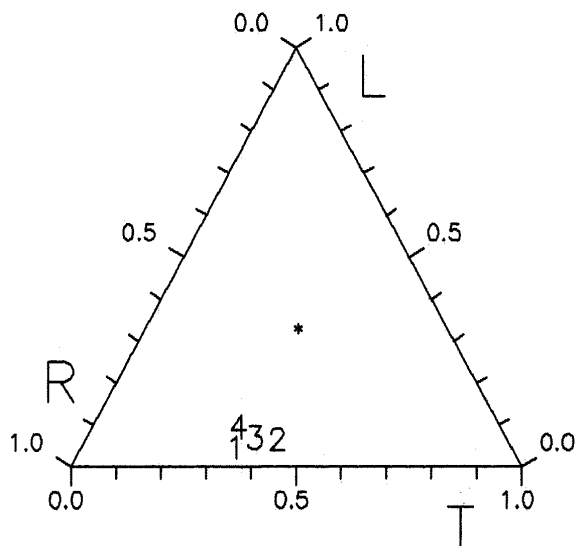


Рис.3. Сводная текстур-диаграмма исследованных образцов №№1-3 из сплава КТЦ110, и образца (№4) штатной трубы из сплава Э110 (положения точек соответствуют положения номеров; * - изотропное состояние)

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Проведено рентгеноструктурное исследование трёх опытных партий оболочечных труб из сплава КТЦ110 производства ГТИ.
2. Трубы из сплава КТЦ110 имеют сильно выраженную текстуру с низкой плотностью полюсов (0001) вдоль оси.
3. Текстура труб из сплава КТЦ110 производства ГТИ типична для серийной продукции данной номенклатуры и имеет преимущественно радиальный характер (по нормальям (0001)).
4. Применяемые для текстурных исследований методы изготовления и подготовки образцов, съемка дифрактограмм и их аналитическая обработка рекомендованы к применению при сертификации и аттестации циркониевых изделий производства Украины.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. G. Fleck, R.A. Holt, V. Perovic, J. Tadros. Effect of temperature and neutron fluence on irradiation growth of Zr-2.5 wt.%Nb. – J. Nucl. Mater. 1988. V.159, compl. P.75-85.
2. Книжников Ю.Т., Коломыткин В.В. Влияние текстуры призматических плос-

костей на анизотропию деформации облучаемых циркониевых сплавов // Атомная энергия. 1984. Т.57. Вып.2. С.95-99.

3. Кобылянский Г.П., Шамардин В.К., Островский З.Е. и др. Радиационное формоизменение оболочечных и канальных труб из сплавов циркония при высоких флюенсах нейтронов // Радиационное материаловедение: Труды Международной конференции по радиационному материаловедению. Алушта, 22-25 мая 1990. г. Харьков, Т.4. С.64-72.
4. Григорьев В.М., Никулина А.В., Каплий С.Н. и др. Оценка трещиностойкости материала канальных труб из сплава Zr-2,5%Nb после СВЧ-обработки // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. 1992. Вып.1(58), 1(59). С104-111.
5. Прасолов П.Ф., Шестак В.Е., Платонов П.А. и др. Анизотропия модуля упругости и коэффициента теплового расширения текстурированных сплавов циркония Н-1 и Н-2,5 // Атомная энергия. 1990. Т.68. Вып.2. С.98-101.
6. Абрамов В.Я., Головачев М.Г., Калашников В.Е., Родченков Б.С. Радиационный рост циркония // Радиационное материаловедение: Труды Международной конференции по радиационному материаловедению. Алушта, 22-25 мая 1990 г. Харьков. 1991. Т8. С.35-40.
7. Никулина А.В., Перегуд М.М., Шамардин В.К., Кобылянский Г.П. Металлургические факторы, определяющие свойства циркония под облучением // Радиационное материаловедение: Труды Международной конференции по радиационному материаловедению. Алушта, 22-25 мая 1990. г. Харьков, Т.4. С.40-46.
8. Зеленский В.Ф., Стукалов А.И., Неклюдов И.М. и др. Скоростная высокочастотная термообработка и радиационный рост циркониевых сплавов // Радиационное материаловедение: Труды Международной конференции по радиационному материаловедению. Алушта, 22-25 мая 1990. Харьков, Т.4. С.55-63.

9. Никулина А.В., Григорьев В.М., Маркелов В.А. и др. Результаты исследований по стабилизации структуры и свойств холоднодеформированных канальных труб из сплава Zr-2,5%Nb // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы. 1993. Вып.1(48). С.3-12.
10. Цыканов В.А., Давыдов Е.Ф., Куприенко В.А. и др. Изменение размеров изделий из циркониевых сплавов, облученных в реакторе СМ-2 до большого флюенса нейтронов // Атомная энергия. 1983. Т.55. Вып.4. С.211-214.
- 11.Кобьянский Г.П., Новоселов А.Е. Радиационная стойкость циркония и сплавов на его основе. Справочные материалы по реакторному материаловедению / Под ред. В.А. Цыканова. г. Димитровград: ГНЦ РФ НИИАР, 1996.-176с.
- 12.Мацегорин И.В., Аблогин А.Л. Систематизация текстур промышленных изделий из циркониевых сплавов // Атомная энергия. 1988. Т.65. Вып.1. С.38-45.
- 13.ТУ 95.01.07.-77. Трубы из сплавов циркония Э110 и ЦЖХВ.
14. ТУ 95.405-89 (Взамен ТУ95.405-81). Трубы бесшовные холоднокатаные из сплава Э110. Срок введения с 01.01.90.
15. Технические требования на трубы, изготавливаемые ТОЭЗ (Украина) №53-32/760 от 19.07.95.
- 16.ASTM B353-77a. Alloy Steamless and Welded Tubes for Nuclear Service.
- 17.Некрасова Г.А., Парфенов Б.Г., Смирнов Ю.В., Пиляев А.С. Производство циркониевых сплавов и технические требования, предъявляемые к ним // Атомная техника за рубежом. 1978. №3. С.17-27.
18. Родченков Б.С. Трубы для ядерных энергетических реакторов // Атомная техника за рубежом. 1974. №8.С.3-10.
- 19.Некрасова Г.А. Цирконий в атомной промышленности. Вып. 16. Промышленное производство циркония и изделий из циркониевых сплавов для атомной энергетики за рубежом. Обзор. М.: ЦНИИАтоминформ, 1988.- С.60.
- 20.Горский В.В. Контроль в производстве твэлов для реакторов PWR и BWR // Атомная техника за рубежом. 1981. №4. С.10-19.
- 21.Займовский А.С., Никулина А.В., Решетников Н.Г. Циркониевые сплавы в атомной энергетике, М.: Энергоатомиздат. 1994.
22. Брюханов А.А., Манжиков А.В., Тарасов А.Ф. Оценка анизотропии коэффициента Пуассона циркониевых листов.
- 23.Исаенкова М. Г., Конопленко В.П., Новиков В.В., Перлович Ю.А., Просолов П.Ф.. Влияние текстуры на пластическую деформацию прокатанного сплава Zr-1%Nb при растяжении // Атомная энергия. 1982. Т.52. Вып.5. С.310-313.
- 24.Chirkin A.V., Gajum N.R., Ben Shaban A.I., Kher Ramadan K. On the anisotropy of zirconium its alloys with niobium // J. Nucl. Mater. 1987. V.148. №2. P.171-174.
- 25.Дуглас Д. Металловедение циркония. М.: Атомиздат, 1975.
- 26.Field G.J. Problems caused by irradiation deformation in CANDU reactors // J. Nucl. Mater. 1988. V.159. Compl. P.3-11.
- 27.Franclin D.G., Adamson R.B. Implication of zircaloy creep and growth to light water reactor performance // J.Nucl. Mater. 1988. V.159. Compl. P.12-21.
- 28.Григорьев В.М., Никулина А.В. Анизотропия трещиностойкости материала канальных труб из сплава Zr-2,5%Nb // Атомная энергия. 1990. Т.69. Вып.4. С.230-233.
- 29.Решетников Н.Г., Кудряшов Ю.Н., Пантелеев Л.Д. Исследование влияния некоторых технологических параметров (величин Q и ε) при изготовлении труб из сплава циркония с 1% Nb на текстуру и распределение гидридов // Fabrication of Water Reactor Fuel Elements. Proc. of Symp. Prague. 6-10 November, 1978. Vienna, 1979.P.441-450.
- 30.Marshall R.P. Control of hydride orientation in zircaloy by fabrication practice // J. Nucl. Mater. V.1967. V.24. №1. P.49-59.

31. Желтухин К.К., Тутнов А.А., Ульянов А.И. Математическое моделирование влияния анизотропии ползучести на напряженно-деформационное состояние канальных труб // Атомная энергия. 1987. Т.63. Вып.2. С.86-89.
32. Перлович Ю.А., Исаенкова М.Г., Шмелева Т.К., Никулина А.В., Завьялов А.Р. Изменение текстуры труб из сплава Zr-2,5%Nb при рекристаллизации // Атомная энергия. 1989. Т.67. Вып.5. С.327-331.
33. Исаенкова М.Г., Павелко В.П., Перлович Ю.П. Закономерности изменения текстуры альфа-циркония при поперечной прокатке // Атомная энергия. 1987. Т.62. Вып.3. С.168-172.
34. Tenckhoff K., Rittenhouse P.L. Annealing textures in zircaloy tubing. // J.Nucl. Mater. 1970. V.35. ¹1. P.14-23.
35. Morris P.R. Reducing the effects of non-uniform pole distribution in inverse pole figure studies // J.Appl. Phys. V.30, ¹4. P.595-596.
36. Баяковский Ю.М., Гринберг Г.С., Зиман Ю.Л., Михайлова Т.Н. ГРАФОР: Комплекс графических программ на ФОРТРАНе. Вып.1-19. М. Препринты ИПМ, 1972-1977.