

РАЗДЕЛ ТРЕТИЙ

ФИЗИКА И ТЕХНОЛОГИЯ КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ

УДК 669.296:621.78.019.84

ВЛИЯНИЕ ОТЖИГОВ НА МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ТВЭЛЬНЫХ ТРУБ ИЗ СПЛАВА Zr1Nb НА ОСНОВЕ КАЛЬЦИЕТЕРМИЧЕСКОГО ЦИРКОНИЯ

И.А. Петельгузов, В.И. Савченко, М.В. Мухин

*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,
г. Харьков, Украина*

E-mail: petelg@kipt.kharkov.ua; факс: (057)335-27-54, тел. (057)335-67-67

Изучались механические характеристики (предел прочности, предел текучести, относительное удлинение) образцов труб из сплава Zr+1%Nb (мас.) при комнатной температуре и при повышенных температурах – 350, 380 и 420 °С) в состоянии поставки и исследовалось влияние дополнительных отжигов труб при температурах 580...1200 °С в течение 3 и 10 ч. Задача исследований – определить механические характеристики труб из сплава Zr1Nb с повышенным до 0,16 мас.% содержанием кислорода и сравнить полученные данные с аналогичными свойствами штатного для твэлов реактора ВВЭР-1000 сплава Э110, у которого содержание кислорода составляет 0,08%. Показано сходство и различие свойств обоих сплавов в исходном состоянии и после отжигов в широком диапазоне исследованных температур.

ВВЕДЕНИЕ

Механические испытания дают важную характеристику исследуемым материалам в плане оценки его работоспособности. По этой причине в работе много внимания уделяется определению механических характеристик твэльных труб из сплавов кальциетермического метода получения, в которых содержится повышенное количество кислорода, как известно сильно влияющего на прочностные и пластические свойства циркониевых сплавов. Ранее уже исследовались механические свойства труб из сплава Zr1Nb [1,2]. При этом были получены различающиеся результаты по определению основных механических свойств материала труб.

В данной работе проводятся дополнительные исследования механических свойств сплавов с повышенным содержанием кислорода в исходном состоянии и после дополнительных отжигов.

1. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Исходным материалом для исследований были твэльные трубки, полученные в Днепропетровском государственном трубном институте из кальциетермического сплава Zr1Nb экспериментальных плавок [1]. Из них изготавливали кольцевые образцы с наружным диаметром 9,15 и внутренним 7,72 мм, шириной 2,7 мм. Для сравнения изучались и механические свойства труб из сплава Э110, изготовленных в России, отобранных из штатных партий, поставляемых на изготовление твэлов для ВВЭР-1000. По имеющимся данным химического и ядерно-физического анализов химический состав сплава Zr1Nb сходен с составом Э110, за исключением примеси кислорода, содержание которой в кальциетермическом сплаве – 0,12...0,16%, а у Э110 – 0,08% (табл.1).

Механические испытания образцов проводили на установке 1246Р-2/2300, конструкции НИКИМПа, и на установке МР-05 по методике испытаний кольцевых образцов циркониевых сплавов, разработанной ННЦ ХФТИ [3] в соответствии с методикой РМИ 244-68-99 Государственным трубным институтом [4] и методикой испытаний штатных твэльных труб ОИ001.325 России [5]. Испытания при комнатной температуре (20...25 °С) проводили на воздухе, а испытания при 350 °С - в аргоне. Высокотемпературные отжиги в экспериментах по изучению влияния отжигов на механические свойства проводили в вакууме $1 \cdot 10^{-3}$ Па.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

2.1. Испытания кольцевых образцов в исходном состоянии

Трубы-оболочки для тепловыделяющих элементов изготавливаются из толстостенных заготовок путём многократных прокаток и промежуточных отжигов с целью доведения их размеров до проектных значений. После завершения процесса изготовления выполняется последний так называемый финишный отжиг, который выполняется при температуре 580 °С в течение 3 ч. Такая термообработка считается достаточной для снятия наклёпа и приведения сплава в рекристаллизованное состояние, и этот режим определён Техническими условиями на изготовление промышленных партий труб из сплавов циркония как штатный.

Результаты определения механических характеристик в поперечном направлении образцов трубок из сплавов Zr1Nb и Э110 в исходном состоянии приведены в табл.2.

Химический состав сплавов

Состав сплава, партия, плавка	Состав по лег. доб. Nb (мас.%)	Примеси ($\times 10^{-3}$ % мас)													
		O	N	C	Ca	Si	Al	Cu	Ti	Fe	Ni	Cr	Mo	H	F
Zr1Nb (плавка 797)	1,06	120	5,0	5,0	4,8	3,0	1,5	1,3	1,6	19	4,0	2,0	1,0	1,4	3
Zr1Nb (плавка 904)	0,96	120-130	6,0	11,0	1,8	20,0	1,0	0,7	1,5	40	7,0	1,5	2,0	1,5	3,0
Zr1Nb (плавка 906)	1,06	130-140	6,0	10,0	4,0	18,0	1,4	2,1	1,5	25	4,0	1,3	2,0	1,5	3,0
Zr1Nb (плавка 803)	0,97	140	3,5	2,0	4,8	6,0	1,3	0,6	8,0	26	6,0	3,0	1,0	1,5	3,0
Э110	0,96	70	6,0	-	-	-	-	3,0	4,0	21,0	11,0	3,0	-	-	0,90
Э110 (ТУ 95.405-89)	0,9-1,1	60-100 (*)	6,0	20,0 (*)	20,0 (*)	20,0 (*)	8,0	5,0	5,0	20,0 (*)	20,0 (*)	20,0 (*)	5,0	1,5	3,0

Таблица 2.

Механические характеристики трубок из сплавов Zr1Nb и Э110 в исходном состоянии и после испытаний при разных температурах

Сплавы	20 °С			350 °С			380 °С			420 °С		
	σ_B , МПа	$\sigma_{0,2}$, МПа	δ , %	σ_B , МПа	$\sigma_{0,2}$, МПа	δ , %	σ_B , МПа	$\sigma_{0,2}$, МПа	δ , %	σ_B , МПа	$\sigma_{0,2}$, МПа	δ , %
Э110	372	294	32±2	196	159	38±3	182	143	40,0	174	142	40,0
Zr1Nb, пл.797	529	441	25±2	225	176	37±3	22,7	17,9	41,0	17,8	14,5	40,0
Zr1Nb, пл.803	558	441	25±2	225	176	37±3	22,87	17,8	41,1	21,5	17,95	41,1
Zr1Nb, пл.904	529	450	25±2	225	176	38±3	24,7	18,9	41,3	20,8	16,1	37,5
Zr1Nb, пл.906	607	460	25±2	255	186	42±3	231	172	40,0	208	153	40,0

Анализ этих данных свидетельствует о следующем. В исходном состоянии (без отжига) у кольцевых образцов, испытанных при комнатной температуре на растяжение в поперечном направлении, величины пределов прочности и текучести на кольцевых образцах из сплавов Zr1Nb разных плавков находились в диапазоне соответственно 529...607 и 441...460 МПа, что превышает аналогичные значения, полученные на образцах сплава Э110, ($\sigma_B=372$ МПа, $\sigma_{0,2}=294$ МПа) в полтора раза.

Величина относительного удлинения образцов труб сплавов Zr1Nb пл. 803 и 906, у которых содержание кислорода равно 0,13...0,16 мас.%, составляла (25±2)%, что меньше на 22% по сравнению со сплавом Э110.

При температуре испытаний 350 °С кальциетермический сплав Zr1Nb оставался прочнее, чем Э110, но разница в значениях пределов прочности и предела текучести образцов из сплавов Zr1Nb и Э110 была значительно меньшей, чем при 20 °С и состав-

ляла 30...60 МПа, а различие в значениях пределов текучести не превышало 19,6...39 МПа. Усреднённые величины относительного удлинения образцов сплавов Zr1Nb при 350 °С имели высокие значения – в интервале 37...42%, у сплава Э110 – 38...40%.

Тенденция к повышению характеристик относительного удлинения у сплава Zr1Nb по сравнению со сплавом Э110 при повышенных температурах отмечалась в работе Киселевского В.Н. и др. [2]. В этой работе относительное удлинение для труб из сплава Zr1Nb при 380 °С достигало даже 70...80%. Следует отметить, что методика испытаний [2] имела отличие от применяемой здесь – крепление кольцевых образцов осуществлялось также на полуцилиндрических опорах, но диаметром 7 мм.

Испытания при температурах 380 и 420 °С показали незначительное уменьшение прочностных характеристик (σ_B и $\sigma_{0,2}$) сплава Zr1Nb с повышением температуры и практически неизменное значение

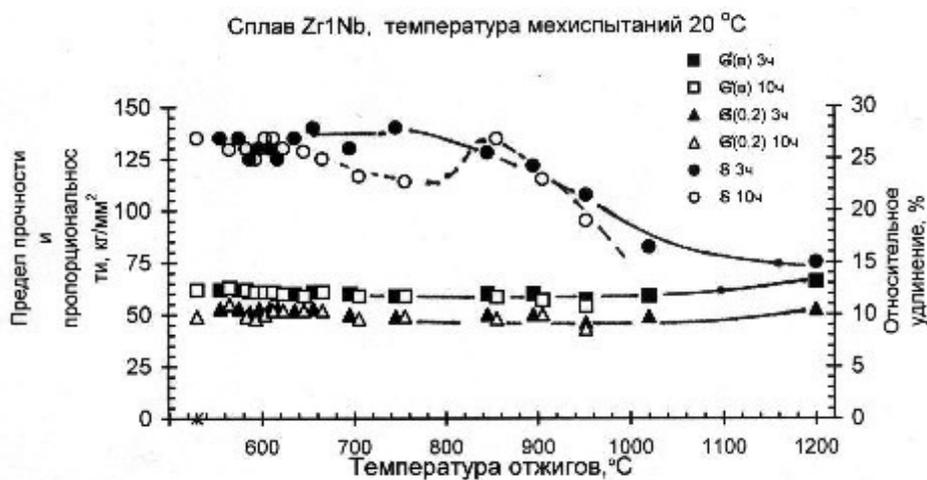
величин относительного удлинения (δ) по сравнению со свойствами сплава Э110.

2.2 Влияние высокотемпературных отжигов на механические свойства

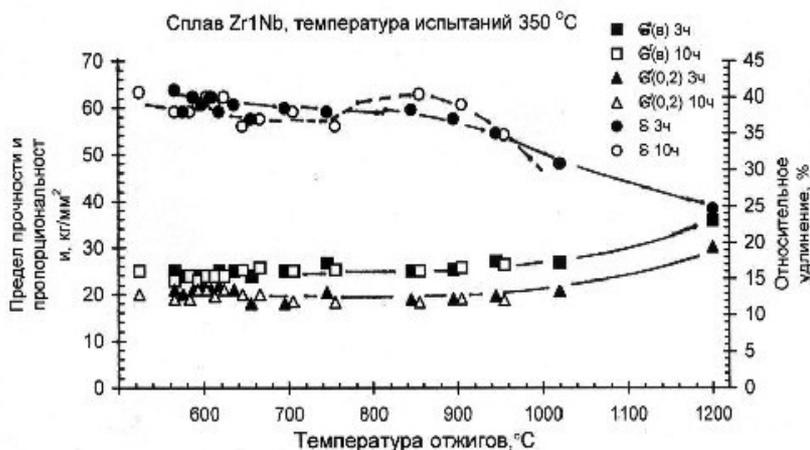
Представляло интерес исследовать влияние термических отжигов образцов трубок из сплава Zr1Nb в верхних областях α -фазы (при 580...610 °C), в заэвтектидной части диаграммы (610...860 °C) и в области β -фазы (860...1200 °C). При этом преследовались две основные цели: изучить возможный диапазон режимов отжигов для повышения пластических свойств сплава и второе, определить механические свойства материала труб после отжигов в разном структурном состоянии в области α -, $\alpha+\beta$ - и β -фаз. Отжиг, как уже говорилось, проводили в ва-

кууме. С помощью шлюзового устройства образцы вводились в разогретую до заданной температуры печь и извлекались из печи достаточно быстро. Время нагрева составляло 5 мин, время охлаждения 7...10 мин. Рентгеновским анализом было подтверждено, что сплавы после отжига находятся в том фазовом состоянии, которое обусловлено температурой отжига и охлаждением. Для механических испытаний были выбраны трубы из сплава Zr1Nb плавки 906, где содержание кислорода наибольшее, и трубы из штатного сплава Э110, которые испытывались с целью сравнения.

Результаты испытаний после отжигов труб из сплавов Zr1Nb показаны на рис.1, а на рис.2 - данные для сплава Э110. Механические испытания проводились при комнатной температуре на воздухе и при 350 °C в аргоне.



а



б

Рис. 1 Зависимость от времени и температуры отжига механических характеристик (предела прочности σ_b и предела текучести $\sigma_{0,2}$ и относительного удлинения δ) труб из кальциетермического сплава Zr1Nb при комнатной температуре (20 °C) (а) и при рабочей температуре оболочек твэлов (35 °C) (б)

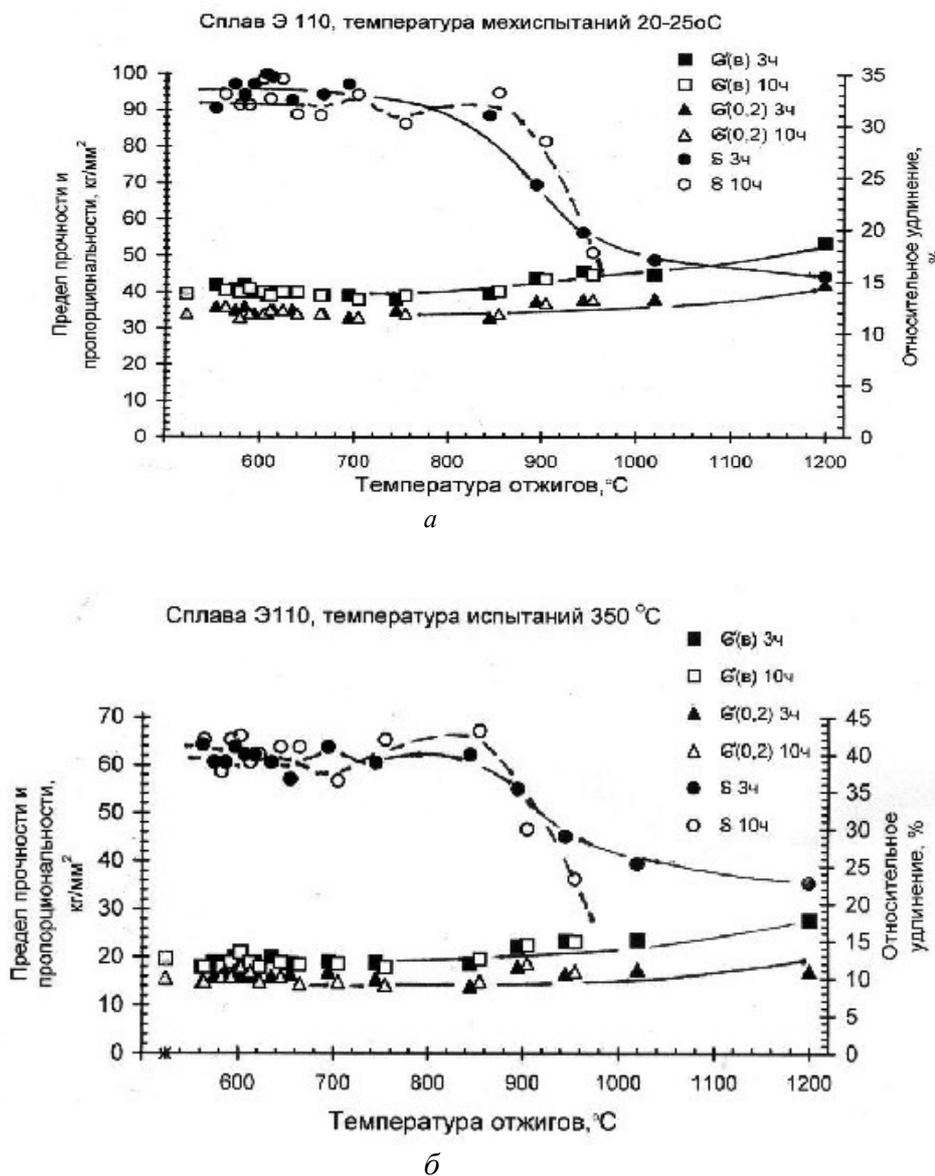


Рис. 2 Зависимость от времени и температуры отжига механических характеристик (предела прочности $\sigma_{\text{в}}$ и предела текучести $\sigma_{0,2}$ и относительного удлинения δ) труб из кальциетермического сплава Zr1Nb при комнатной температуре (20 °С) (а) и при рабочей температуре оболочек твэлов (350 °С) (б)

3. ОБСУЖДЕНИЕ

При выполнении данной работы мы изучали сплав Zr1Nb, в котором содержание кислорода (0,12...0,16%) находилось в тех пределах, которые уже исследовались в циркониевых сплавах в других работах [6-8], где циркониевые изделия с повышенным содержанием кислорода рассматривались как пригодные для использования в реакторостроении. В настоящее время в связи с разработками технологий в атомной промышленности начинают применяться сплавы с долегирированием сплавов кислородом именно из-за высоких их прочностных свойств. Имеющаяся в Украине технология получения кальциетермического циркония позволяет получать

сплавы с содержанием кислорода до 0,16 мас %. Однако с целью подгонки состава Zr1Nb к составу штатного сплава Э110 выдвинуты предложения об уменьшении содержания в нём кислорода. Последнее может достигаться методами разбавления чистым цирконием и переплавом, но эти процедуры значительно усложняют и удорожают технологию производства сплавов. Поэтому представляет интерес всесторонне изучать свойства труб из сплава на основе кальциетермического циркония с повышенным содержанием кислорода.

В данной работе исследуется важный фактор - влияние дополнительных отжигов (сверх технологического на заводах – 580°С, 3 ч) в области выше 580

°С на механические свойства трубок из сплава Zr1Nb, прошедших такую термическую обработку.

Ранее, при разработке сплава Э110 очистки циркония добивались по двум причинам: первая, из-за пониженной технологичности упрочнённого кислородом сплава, что могло влиять на исходное качество труб, вторая, из-за недостаточных знаний свойств материала были опасения о возможном снижении пластических свойств, и без того пониженных, в процессе реакторного облучения [9]. Не было также полной ясности с влиянием кислорода на коррозионную стойкость, трещиностойкость, коррозионное растрескивание материала оболочки под напряжением.

Полученный в Украине сплав имеет достаточно высокую чистоту по общим примесям, хотя содержание кислорода в нём было выше, чем в штатном сплаве Э110 примерно в 1,5-2 раза. Было принято решение о внедрении этой методики и сплава в опытное производство, а в случае успешного его решения, и в серийное. Предварительно были проведены реакторные испытания опытных сборок в реакторе МР Института им. Курчатова И.В. Сборки выдержали испытания до проектных выгораний при 3-летнем эксплуатационном цикле (до 40...49 МВт·сут./т). Результаты разработок и испытаний приведены в работе [10].

Проведенные дополнительные исследования [1] также подтверждают достаточно высокие и стабильные свойства сплава Zr1Nb в широком диапазоне температур при испытаниях во вне реакторных условиях. Повышенная прочность может оказаться полезным качеством материала для его применения в виде оболочек твэлов. Пониженная пластичность при комнатной температуре (до 25% по сравнению с требуемым значением относительного удлинения по ТУ - >28%) является предметом дальнейших исследований относительно возможности применения такого сплава с повышенным содержанием кислорода, имея в виду то, что при рабочих температурах твэлов (~350 °С) пластические свойства труб из сплава Zr1Nb не уступают свойствам сплава Э110.

ВЫВОДЫ

1. Проведены механические испытания кольцевых образцов твэльных труб из кальциетермического циркониевого сплава Zr1Nb с различными концентрациями кислорода при комнатной температуре (20°С), при рабочей температуре оболочек твэлов (350 °С) и при повышенных температурах – 380 и 420°С. Испытано свыше 500 шт. кольцевых образцов.

2. На большой статистике испытаний показано, что при комнатной температуре прочность труб из сплава Zr1Nb выше (в 1,3-1,5 раза) по сравнению с прочностью труб сплава Э110, а пластичность ниже на 20...22%. При температуре 350 °С прочностные показатели (σ_b и $\sigma_{0,2}$) ниже на 200...300 МПа, а пластичность находится на одном уровне со сплавом Э110 (около $(40 \pm 2) \%$). Сохраняется относительно

высокая прочность труб и при температуре испытаний 380 и 420 °С и высокая пластичность.

3. Показано, что отжиги в течение $\tau = 3...10$ ч в доэвтектоидной области диаграммы состояния системы Zr-Nb (580...610 °С) и заэвтектоидной её части (610...850°С) мало изменяют кратковременные механические свойства (σ_b , $\sigma_{0,2}$) сплава Zr1Nb, как и аналогичные свойства труб из сплава Э110 при отжиге в тех же условиях, но после отжига при температурах выше 850...950°С наблюдается повышение прочности и снижение пластичности при температурах испытаний 20 и 350 °С.

4. Изменение механических свойств после отжигов в области выше 850 °С связывается с началом перехода и переходом во время отжига структуры в область β -фазы и сохранением после охлаждения структуры превращённой β -фазы (и α' -фазы), где у обоих сплавов понижаются механические характеристики после термических отжигов.

5. Не выявлено режимов термических обработок сплава Zr1Nb, которые бы обеспечили существенное повышение пластичности материала при комнатной температуре.

6. Показаны близкие по характеру зависимости от времени и температур отжигов значения механических характеристик сплавов Zr1Nb и Э110, которые одинаковы по легированию ниобием, но отличаются по содержанию примеси кислорода и по технологии их получения.

ЛИТЕРАТУРА

1. В.С. Вахрушева, Г.Д. Сухомлин, Т.А. Дергач. Комплексная оценка качества изготовленных в Украине первых опытных партий труб-оболочек из сплава Zr1Nb. // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационной поврежденности и радиационное материаловедение»* (77). 1999, №.2, с. 27-32.
2. В.В. Ковалёв, В.Н. Киселевский, В.А. Борисенко, В.В. Бухановский. Оценка работоспособности сплава КТЦ-110 для активных зон ядерных реакторов АЭС // *Труды конференции «Оценка и обоснование продления ресурса работоспособности элементов конструкций ядерных реакторов»* 6-9. 06.2000 г., Киев.
3. Л.С. Ожигин, В.И. Савченко, И.А. Петельгузов. // *Лабораторная методика механических испытаний циркониевых сплавов*: МР. 4512 ПМ, НТК «ЯТЦ» ННЦ ХФТИ, Харьков, 1999.
4. *Методика определения характеристик механических свойств труб из циркониевых сплавов при испытании на растяжение в поперечном направлении*: РМИ 244-68-99. 1999 г
5. Отраслевая методика России ОИ 001. 325-91 // *Методика испытаний для определений характеристик механических свойств кольцевых образцов от штатных труб из сплава Э110 по ТУ 95.405-91 от 17.09.91.*
6. Ф. Гарзаролли, Р. Хольцер. Водная коррозия твэлов LWR. Часть I. // *Атомная техника за рубежом*. 1993, №10, с. 20.

7. В.А. Махова, А.С. Пиляев. Разработка новых циркониевых сплавов для оболочек твэлов водо-водяных реакторов. // *Атомная техника за рубежом*. 1994, №12, с. 3-11.
8. С.В. Иванова, А.В. Никулина. Циркониевые сплавы для компонентов ТВС реакторов типа ВВЭР и РБМК. // *Физика и химия обработки материалов*. 2001, №6, с.15-25.
9. Т.П. Черняева, А.И. Стукалов, В.М. Грицина. Влияние кислорода на характеристики работоспособности циркониевых сплавов // *Труды конференции по проблемам циркония и гафния в атом-*

ной энергетике. 14-19 июня 1999, Алушта. Харьков: ННЦ ХФТИ, 1999, с.86-88.

10. Ю.Ф. Коровин, В.Г. Чуприенко, К.А. Линдт, А.П. Мухачев, В.Д. Федоров, М.Л. Коцарь. Производство циркония и гафния на ПО ПХЗ для удовлетворения потребностей атомной энергетики Украины // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 1994, в.2(62), 3(63), с.114-124.

ВПЛИВ ВІДПАЛІВ НА МЕХАНІЧНІ ВЛАСТИВОСТІ ТВЕЛЬНИХ ТРУБ ІЗ СПЛАВУ Zr1Nb НА ОСНОВІ КАЛЬЦІЕТЕРМІЧНОГО ЦИРКОНІЮ

I.A. Petelguzov, V.I. Savchenko, M.V. Mukhin

Вивчалися механічні характеристики (межа міцності, границя текучості, відносне подовження) зразків труб із сплаву Zr+1%Nb (мас.) при кімнатній температурі і при підвищених температурах – 350, 380 і 420 °С у стані постачання і досліджувався вплив додаткових відпалів труб при температурах 580...1200 °С протягом 3 і 10 г. Задача досліджень – визначити механічні характеристики труб зі сплаву Zr1Nb з підвищенням до 0,16 мас.% вмістом кисню і порівняти отримані дані з аналогічними властивостями штатного для твель реактора ВВЕР-1000 сплаву E110, у якого зміст кисню складає 0,08%. Показано подібність і розходження властивостей обох сплавів у вихідному стані і після відпалів у широкому діапазоні досліджених температур.

INFLUENCE AN ANNEALING ON MECHANICAL CHARACTERISTICS OF FUEL PIPES FROM Zr1Nb ALLOY ON BASE CALCIUM-THERMAL ZIRCONIUM

I.A. Petelguzov, V.I. Savchenko, M.V. Mukhin

In work were studied mechanical features (limit of toughness, limit of fluidity, relative a lengthenning) samples of pipes from Zr+1%Nb alloy (mas) at room temperature and under the increased temperature to 350, 380 and 420 °C) as resieved and was researched influence additional annealing of pipes at temperatures 580...1200 °C during 3 and 10 h. Problem of studies - to define mechanical characteristics of pipes from Zr1Nb alloy with increased before 0,16 wt.% contents of oxygen and compare received givens with similar characteristics staff cladding for fuel rods reactor WWER-1000 (alloy E110), which contents of oxygen forms 0,08%. Shown resemblance and difference of characteristics of both alloys in the source condition and after annealing in the broad range of explored temperatures.