

**ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ЗАКЛЮЧИТЕЛЬНОЙ ТЕРМООБРАБОТКИ  
НА ФИЗИКО-МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ТВЭЛЬНЫХ ТРУБ ИЗ СПЛАВА Zr1Nb  
УКРАИНСКОГО ПРОИЗВОДСТВА**

*А.И. Стукалов, В.С. Красноруцкий, Д.А. Батуревич,  
С.П. Клименко, Н.И. Рагулина, Т.П. Черняева*  
г. Харьков, ННЦ «ХФТИ» НТК «ЯТЦ»

*И.М. Неклюдов, Л.С. Ожигов, Д.Г. Малыхин, В.И. Савченко, Н.Д. Рыбальченко*  
г. Харьков, ИФТТМ ННЦ «ХФТИ»

*В.С. Вахрушева*  
г. Днепропетровск, ГТИ

**Введение.** Физико-механические свойства и эксплуатационные характеристики циркониевых элементов конструкции ядерных реакторов, наряду с химическим составом, в значительной мере определяются структурным состоянием, а, следовательно, параметрами технологического процесса их изготовления. Практика пятидесятилетнего использования циркониевых сплавов в качестве материала реакторостроения показала, что наиболее надежными и высокими эксплуатационными характеристиками обладают циркониевые сплавы, находящиеся в равновесном (полностью рекристаллизованном) состоянии [1, 2].

Твэльные трубы из сплава Zr-1 % мас. Nb российского производства (Э110) используются в полностью рекристаллизованном состоянии; финишный отжиг при их серийном производстве проводится при температуре 580 °С в течение 3 ч. Существенными отличиями при производстве твэльных труб из сплава Zr-1 % мас. Nb в Украине (Zr1Nb) от их производства в России являются метод получения металла (кальциетермическое восстановление тетрафторида циркония), а также различие в химическом составе и методах горячей обработки. Наиболее существенным отличием является повышенное содержание кислорода (в 1,5...2 раза). Это приводит к заметным отличиям в структуре и ряде физико-механических свойств изделий, и, прежде всего, к смещению в сторону более высоких температур  $\alpha \rightarrow \alpha + \beta$  превращения, что отражается на параметрах оптимального финишного отжига изделий.

Учитывая эти различия, представляет интерес определить оптимальные условия финишного отжига твэльных труб Zr1Nb с учётом различия способа получения циркония, метода изготовления слитка и различия в содержании примесей. Оценка оптимальных условий финишного отжига основывается на анализе результатов комплексных исследований и испытаний структуры и ряда физико-механических характеристик включающих:

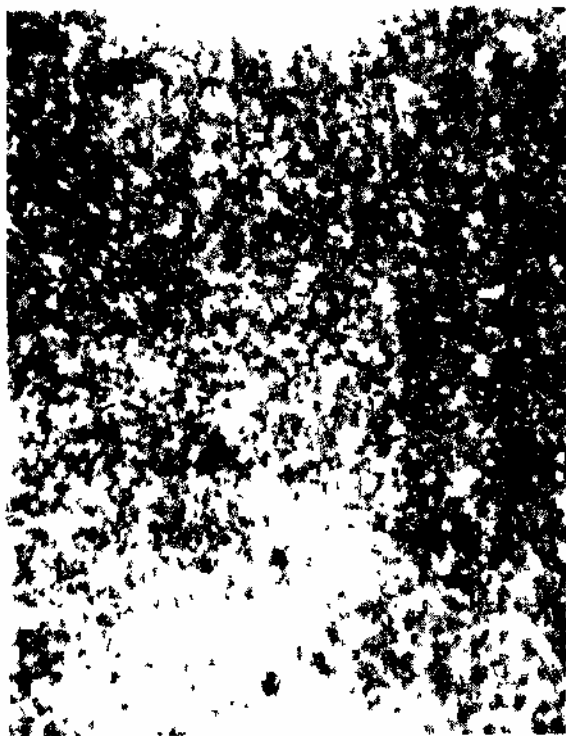
- металлографические исследования;
- рентгеноструктурный анализ;
- измерение твердости и микротвердости материала;
- кратковременные механические испытания;
- определение удельного электросопротивления данного сплава;
- испытания на малоцикловую усталость.

**1. Результаты испытаний и исследований.** 1.1. *Металлография.* Структура исследовалась на оптическом микроскопе МИМ-8 в поляризованном свете. Исследованы две группы образцов – серийные трубы российского производства в состоянии поставки и трубы из сплава Zr1Nb как в состоянии поставки, так и дополнительно отожжённые при температурах 600...640°С (первая группа) и холоднодеформированные трубы украинского производства в состоянии поставки и трубы, отожжённые после холодной деформации при температурах 580...640°С (вторая группа). Металлографическое изображение структуры в поперечном направлении труб из сплава Э110 (штатная обработка) и труб из сплава Zr1Nb

(в состоянии поставки представлены) на рис.1, а, б. В обоих случаях зёрна имеют равноосную форму. Размер зёрен на трубах из сплава Э110 5...7 мкм и на трубах из сплава Zr1Nb – 5...13 мкм. Дополнительный отжиг труб из сплава Zr1Nb при температурах 600.. 640° С не привёл к заметному изменению формы и размера зёрен. На рис.1,в приведена характерная структура сплава после дополнительного отжига при температуре 620° С.



а



б



в

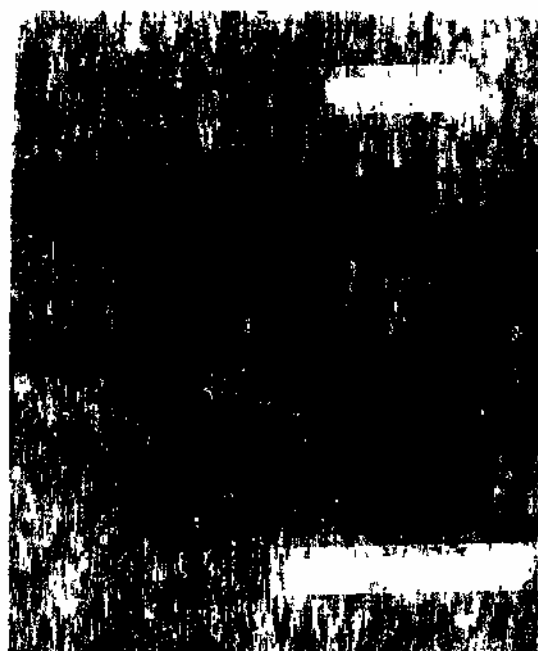
Рис 1 Структура труб в поперечном направлении: а) Э110 (штатная обработка), б) Zr1Nb (в состоянии поставки), в) Zr1Nb (после дополнительного отжига при температуре 620 °С).

На рис. 2, а, б представлена структура в продольном направлении труб из сплава Zr1Nb в двух состояниях. деформированном (см. рис. 2,а) и деформированном и затем отожжённом при температуре 580°С в течение 3 ч (см. рис. 2,б). Зёрна холоднодеформированных труб вытянуты вдоль направления прокатки, их размер ~10 мкм вдоль оси и около 2 мкм в поперечном направлении. После отжига при температурах 580.. 640°С трубы из сплава Zr1Nb имеют мелкозернистую равноосную структуру с размером зёрен 5...13 мкм (рис. 2,б).

Из полученных результатов следует, что отжиг деформированных труб из сплава Zr1Nb при температурах в интервале 580...640°С приводит к рекристаллизации обработки независимо от температуры отжига в указанном интервале. Не наблюдаются признаков собирательной рекристаллизации. По характеру границ зёрен и их размеров сплав Zr1Nb весьма близок к сплаву Э110. Металлографический метод не позволяет определить точные значения процента рекристаллизации обработки.

1.2 Рентгеноструктурные методы. В состав методик рентгеноструктурных исследований, направленных на оптимизацию

режима финишной обработки твэльных труб, входит исследование изменений текстуры, размеров блоков и межблочных микронискажений.



а



б

Рис. 2. Структура труб из сплава Zr1Nb в продольном направлении: а) деформированных; б) деформированных и затем отожжённых при температуре 580°C в течение 3 ч.

Рентгеноструктурные исследования проводились на дифрактометре общего назначения ДРОН4-07 со сцинтилляционным счётчиком в излучении  $\text{CuK}\alpha$ . Исследова-

лись трубы в состоянии поставки, а также деформированные и деформированные с последующим отжигом при температурах 560, 580, 600, 620 и 640°C в течение 3 ч.

Текстурные изменения исследовались методом обратных полюсных фигур [3, 4]; размеры областей когерентного рассеяния рассчитывались согласно [5].

Для наглядного представления текстурных изменений в твэльных трубах сплава Zr1Nb (КТЦ-110) в зависимости от температуры их обработки применён приём отображения текстурных коэффициентов на тригональной текстур-диаграмме [6, 7].

Таблица 1

Текстурные коэффициенты твэльных труб из сплава Zr1Nb в состоянии поставки и деформированных с последующим отжигом в течение 3 ч при разных температурах, измеренных в аксиальном ( $f_l$ ) и азимутальном ( $f_r$ ) направлениях

№ п/п	Температура отжига, °C	$f_l$	$f_r$
1	560	0,049	0,411
2	580	0,052	0,405
3	600	0,056	0,398
4	620	0,053	0,390
5	640	0,044	0,392
6	В состоянии поставки	0,07	0,444

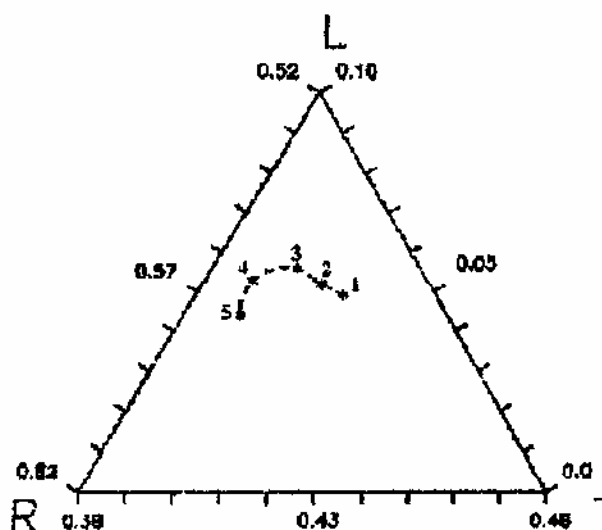


Рис. 3. Текстур-диаграмма, отображающая значения текстурных коэффициентов, определённых для труб из сплава Zr1Nb, деформированных и затем отожжённых при температурах: 580°C, 600°C, 620°C и 640°C, а также для труб Zr1Nb в состоянии поставки.

Значения текстурных коэффициентов, определённых для труб из сплава Zr1Nb де-

Таблица 2

Размеры областей когерентного рассеяния (ОКР) и уровня микроискажений  $\epsilon$  в твзельных трубах из сплава Zr1Nb (ГТИ) в азимутальном (Т) и осевом (L) направлении в зависимости от режима обработки

Вид обработки	Размер ОКР, нм		$\Delta$ , нм	Уровень микроискажений ( $10^{-3}$ )		$\Delta$
	Т	L		Т	L	
В состоянии поставки	>150	61,0...68,5		1,25	1,55	$\pm 0,1$
Холодная деформация (х/д)	>150	75,0...100		2,45	1,9	$\pm 0,2$
х/д + 560°C, 3 ч	66,0	66,0	$\pm 2,5$	0,75	1,1	$\pm 0,1$
х/д + 580°C, 3 ч	57,5...66,0	77,0...83,0		0,85	1,2	$\pm 0,1$
х/д + 600°C, 3 ч	73,5	64,0	$\pm 3,0$	0,85	1,0	$\pm 0,1$
х/д + 620°C, 3 ч	71,0	73,5	$\pm 3,0$	1,25	1,1	$\pm 0,1$
х/д + 640°C, 3 ч	62,5...73,5	61,0...68,5		0,75	1,55	$\pm 0,1$

формированных и затем отожженных при температурах в интервале 560...640 °С, а также для труб Zr1Nb в состоянии поставки приведены в табл.1 и отображены на текстур-диаграмме (рис. 3).

В табл. 2 приведены значения размеров областей когерентного рассеяния (ОКР) и микроискажений, измеренных по ширине профиля рентгеновских отражений от твзельных труб в аксиальном L и азимутальном T направлениях.

При примерном постоянстве измеренных значений текстурных коэффициентов твзельных труб (табл.1) на приведенной текстур-диаграмме (рис. 3) можно отметить изменение хода эволюции текстуры с изменением температуры отжига, начиная с

600 °С. В то же время, по данным табл. 2 в области 600...620 °С можно отметить наличие нерегулярности температурных изменений размеров ОКР и микроискажений в материале труб.

1.3. Измерение твердости и микротвердости. Проводилось по методу Виккерса на образцах труб из сплава Zr1Nb в продольном и поперечном направлениях в зависимости от температуры отжига. Из рис. 4 следует, что минимальное значение твердости ( $\sim 150$  кг/мм<sup>2</sup>) наблюдается на образцах, отожженных в интервале температур 580...620 °С, и не наблюдается заметной разницы в величинах твердости, полученных при измерении в продольном и поперечном направлениях.

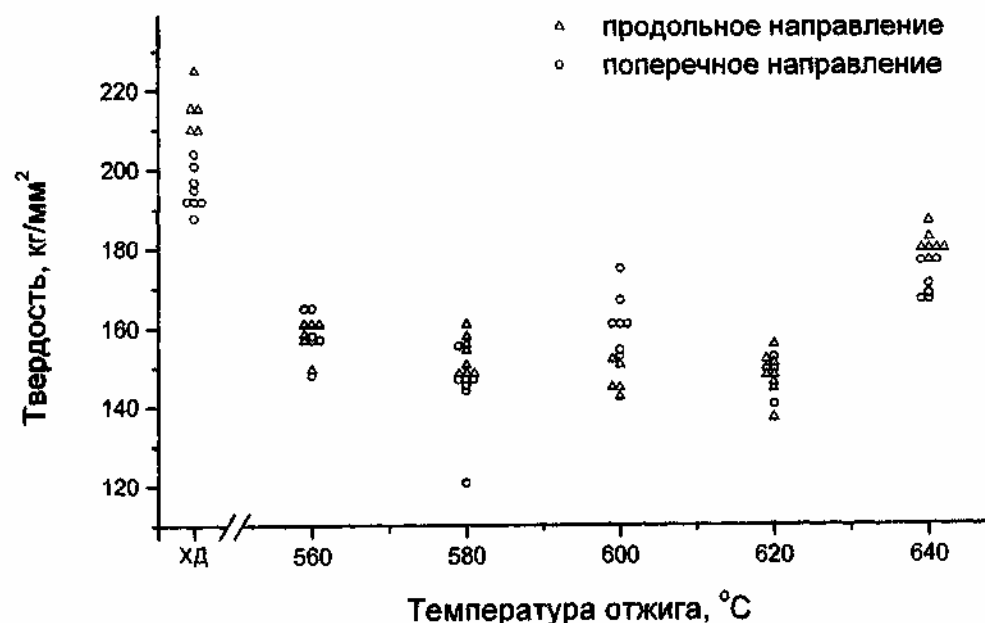
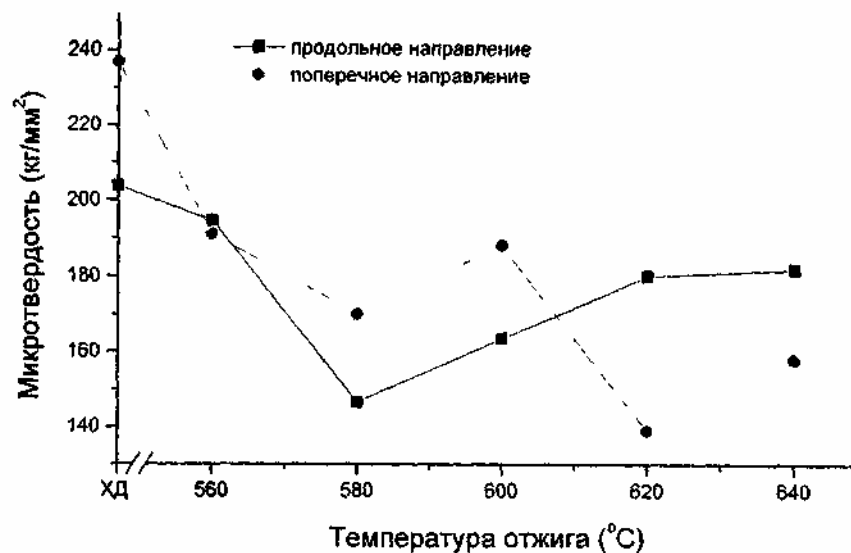


Рис. 4. Твердость по Виккерсу, измеренная в продольном и поперечном направлениях труб из сплава Zr1Nb, в зависимости от температуры отжига.



Р и с. 5. Микротвердость, измеренная в продольном и поперечном направлениях труб из сплава Zr1Nb, в зависимости от температуры отжига.

Разброс значений микротвердости, измеренных на приборе ПМТ-3 с нагрузкой 50 г (рис.5), значителен, и с учетом этого разброса можно полагать, что минимальное значение микротвердости также наблюдается на образцах, отожженных при температурах 580...620°C.

1.4. Механические испытания. Механические испытания проведены на кольцевых образцах по методике ОИ 001.325-91, разработанной в России и рекомендованной для проведения подобных испытаний в Украине [8]. Испытания проводились на установке типа 1246Р-2/2300 НИКИМП на образцах шириной 2,7 мм со скоростью растяжения 1 мм/мин. Результаты приведены в

табл.3 (для каждого вида испытаний использовалось по 3 образца).

Из данных таблицы следует, что дополнительный отжиг труб из сплава Zr1Nb при температуре 610 °С в течение 3 ч незначительно уменьшает предел прочности, заметно (на 15...20 %) понижает предел текучести, слегка увеличивая пластичность. При этом следует подчеркнуть, что пластичность при комнатной температуре и на отожженных при 610°C в течение 3 ч трубах из сплава Zr1Nb остается заметно ниже минимального значения этой величины (28 %), определенной требованиями на трубы реакторного назначения из сплава Э110.

Таблица 3

Механические свойства кольцевых образцов из сплавов Zr1Nb (КТЦ-110) и Zr-1%Nb (Э 110)

Сплав	Термообработка	Температура испытаний, °С	$\sigma_{в}$ , МПа	$\sigma_{0,2}$ , МПа	$\delta$ ,%
Э110	штатная	20	370...400	300...310	30...33
Zr1Nb	в состоянии поставки	20	580...590	450...470	20...23
Zr1Nb	в состоянии поставки + отжиг 610°C, 3 ч	20	560...570	380...410	20...25
Э110	штатная	350	200...206	170...172	38...40
Zr1Nb	в состоянии поставки	350	280	240	36
Zr1Nb	в состоянии поставки + отжиг 610°C, 3 ч	350	220	190	38...40

1.5. Метод измерения удельного электросопротивления. Использовались твэльные трубы из сплава Э 110 (Россия) в состоянии поставки и после дополнительных отжигах при температурах 580...640°C и из сплава Zr1Nb украинского производства в состоянии поставки, а также после отжигах холоднодеформированных труб в интервале температур 580...640°C, 3 ч. Из труб электронским методом вырезались продольные полоски шириной 1,0...1,5 мм и длиной ~100 мм, которые подвергались вакуумным отжигам в указанном интервале температур. База измерений составляла 50 мм. Измерения проводили компенсационным методом с использованием потенциометра Р-363-2 на образцах в исходном состоянии и после вакуумных отжигах. Величину электросопротивления определяли как среднее арифметическое из двух показаний, полученных при пропускании тока в противоположных направлениях. При каждой температуре и времени отжига измерению подвергались по 3 образца. Погрешность измерений на одном образце не превышала ±0,05 %, разброс значений  $\rho$  на серии образцов не превышала 0,5 %.

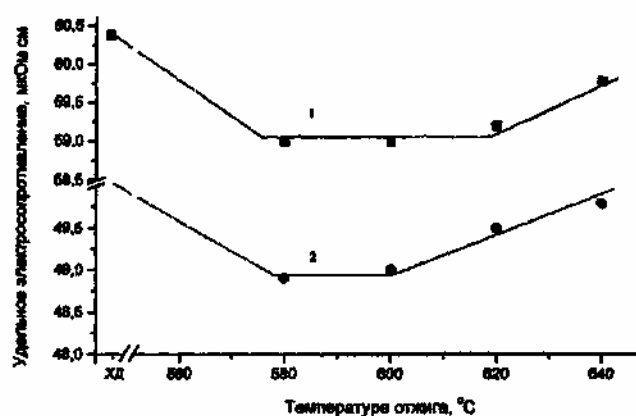


Рис. 6. Удельное электросопротивление твэльных труб из сплава Э-110 в состоянии поставки и после дополнительных отжигах при температурах 580...640°C и из сплава Zr1Nb в состоянии поставки, а также после отжигах холоднодеформированных труб в интервале температур 580...640°C, 3 ч.

Результаты измерений представлены на рис. 6. Прежде всего необходимо отметить сходство в кинетике изменения  $\rho$  обоих сплавов в том, что минимальные значения величины удельного электросопротивления для обоих сплавов наступают при темпера-

туре 580 °C, причем для российского сплава эта величина составляет 48 мкОм·см, что на 20% ниже, чем для сплава украинского производства. Следующее отличие заключается в том, что температурный интервал минимального значения  $\rho$  для российского сплава составляет 20°C (580...600 °C), а для украинского он составляет ~40°C (580...620°C), что может свидетельствовать об увеличении температуры  $\alpha \rightarrow \alpha + \beta$ -превращения сплава украинского производства.

1.6 Испытания на малоцикловую усталость. Проводились на образцах, отрезанных от твэльных труб из сплава Zr1Nb украинского производства. Образцы представляли собой кольца шириной 3,3 мм с осевым разрезом. Концы колец закреплялись в зажимах, и образцы подвергались знакопеременной деформации при температуре 350°C в упруго-пластической области путем сжатия и растяжения с амплитудой деформации 4 мм. Весь процесс деформирования проводился в вакууме  $\sim 1 \cdot 10^{-5}$  мм рт. ст. Исследовалось влияние отжига исходных холоднодеформированных образцов в интервале температур 580...640 °C на малоцикловую усталость, определяемую как количество циклов до разрушения.

Результаты исследований представлены на рис. 7. Следует отметить две особенности: максимальное количество циклов до разрушения наблюдается на образцах, отожженных в температурной области 600...620°C, а при более низких и более высоких температурах отжига это количество резко падает.

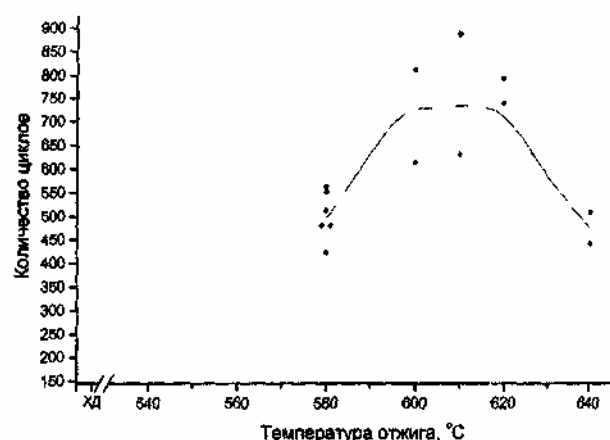


Рис. 7. Число циклов до разрушения твэльных труб из сплава Zr1Nb в зависимости от температуры отжига.

## 2. Обсуждение результатов и выводы.

Одним из наиболее реальных направлений повышения качества изделий из цирконий-ниобиевых сплавов является правильно подобранная термомеханическая обработка на всех стадиях производства изделий и особенно на завершающей стадии – холодной обработке. Наилучшим способом контроля параметров термомеханической обработки изделий на этой стадии в зарубежных фирмах является использование т.н. совокупного параметра отжига  $\Sigma A$ , который учитывает все параметры деформации промежуточных и окончательного отжига изделий. Конечной целью является разработка технологической схемы, обеспечивающей в изделиях полностью рекристаллизованную структуру. Подобная структура обеспечивает наилучшую коррозионную стойкость изделий в водных средах, в том числе под напряжением, минимальную ползучесть под облучением и, в конечном счете, максимальную работоспособность в рабочих условиях.

В настоящей работе не учитывались параметры деформации при холодном переделе и промежуточные отжиги изделий (это может и должно быть предметом дальнейших исследований). Основное внимание сосредоточено на наиболее точном определении температурных границ финишного отжига труб, обеспечивающего максимальную степень рекристаллизации.

Анализ результатов показал, что такими границами для данной опытной партии труб украинского производства является интервал температур 600...620°C. Трубы, отожженные в этом температурном интервале, характеризуются мелкозернистой структурой, минимальным значением удельного электросопротивления и максимальным числом циклов до разрушения при малоцикловой усталости; рентгеноструктурные исследования показывают значительное уменьшение размеров блоков и величины искажений решетки с одной стороны и практически неизменность кристаллографической текстуры – с другой; существенно уменьшаются значения твердости и микротвердости. Можно полагать, что  $\beta_Z$ -фаза, возникающая в сплаве в процессе изготовления, полностью распалась,

избыточный ниобий выделился из твердого раствора и структура и выделения находятся в полностью равновесном состоянии. Следует заметить, что в этом состоянии величина удельного электрического сопротивления сплава на 20 % превышает значение этой величины для сплава Э110 российского производства, что обусловлено увеличенным содержанием примесей и, прежде всего, кислорода.

Таким образом, в результате разработанной методологии определения параметров рекристаллизационного отжига, объединяющая исследование качества изделий различными методами, позволяющими обозначить температурные и временные границы процесса рекристаллизации.

Применение разработанной методологии к опытной партии твэльных труб из сплава Zr1Nb украинского производства позволило определить параметры рекристаллизации труб, составляющие:  $T = 600...620^\circ\text{C}$ ,  $t = 3$  часа.

### Библиографический список

1. Shebaldov P.V., Peregud M.M., Nikulina A. V., Bibilashvili Y.K., Lositski A.F., Kuz'menko N.V., Belov V.I., Novoselov A.E. E110 alloy cladding tube properties and their interrelation with alloy structure-phase condition and impurity content // Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth Inter. Symposium, ASTM STP 1354, Philadelphia: ASTM, 2000, p.545-559.
2. Gilbon D., Soniak A., Doriot S., Mardon J.-P. Irradiation creep and growth behavior, and microstructural evolution of advanced Zr-base alloys // Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth Inter. Symposium, ASTM STP 1354, Philadelphia: ASTM, 2000, p.51-73.
3. Агеев Н.В., Бобарэко А.А., Бецофен С.Я. Метод обратных полюсных фигур // Известия АН СССР. Металлы. – 1974. – №1 – С.94-103.
4. Morris P.R. Reducing the effects of nonuniform pole distribution in inverse pole figure studies // J. Appl. Phys. 1959, v.30, №4, p.595-596.
5. Иверонова В.И., Ревкевич Г.П. Теория рассеяния рентгеновских лучей. – М.: Изд-во Московского ун-та, 1972. – С.1-248.
6. Мацегорин И.В., Евстюхин А.И., Никишов О.А., Осипов В.В. Влияние текстуры на анизотропию физических и механических свойств канальных и оболочечных труб из сплавов на основе циркония / Препринт МИФИ 008-84. – М., 1984. – С.1-30.
7. Ажажа В.М., Ковтун Г.П., Малыхин Д.Г., Рагулина Н.И., Стукалов А.И., Грицина В.М., Вахрушева В.С. Текстурные характеристики опытной партии твэльных труб из сплава КТЦ110 // Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика радиацион-

ных повреждений и радиационное материаловедение. – 1999. – №2(77). – С.86-93.

8. Неклюдов И.М., Ожигов Л.С., Савченко В.И., Стукалов А.И. и др. Особенности определе-

ния характеристик пластичности кольцевых образцов из циркониевых сплавов в поперечном направлении // Проблемы прочности. – 2001. – №2(350). – С.137-141.

УДК. 669.621.78.019.84

## ИССЛЕДОВАНИЕ НЕКОТОРЫХ ХАРАКТЕРИСТИК РАБОТОСПОСОБНОСТИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО СПЛАВА Zr1Nb (КТЦ-110) КАК МАТЕРИАЛА ДЛЯ ТВЭЛОВ РЕАКТОРА ВВЭР-1000

*В.С.Красноруцкий, И.А.Петельгузов, В.Р.Татарин, В.К.Яковлев, Л.С.Ожигов, Н.Н.Белаш, А.Г.Родак, В.И. Савченко*

г. Харьков, ННЦ “Харьковский физико-технический институт”

*Исследованы кинетика коррозии и механические свойства кальциетермического циркониевого сплава Zr1Nb (КТЦ-110) украинского производства в виде оболочек твэлов реактора ВВЭР-1000, изготовлены из него и испытаны модели твэлов в воде при температуре и давлении, близких к аналогичным параметрам активной зоны реактора. Исследования после испытаний в течение 5000 ч показали, что оболочки и модели твэлов из сплава КТЦ-110 имеют достаточно высокие характеристики работоспособности, близкие к таковым для штатного сплава Э110, применяющегося в твэлах ВВЭР-1000.*

Данная работа является продолжением исследований, выполненных ранее [1, 2], по изучению характеристик труб для тепловыделяющих элементов, изготовленных из кальциетермического циркониевого сплава Zr1Nb (далее КТЦ-110) украинского производства. Целью данной работы являлось изучение влияния повышенных количеств кислорода в сплаве КТЦ-110 экспериментального состава на его свойства до и после длительных коррозионных испытаний. Изучалась устойчивость моделей твэлов к термоциклированию.

**1. Материалы и методики исследований.** В качестве исследуемых материалов были использованы твэльные трубы из кальциетермического циркониевого сплава КТЦ-110 экспериментального состава четырех плавов №№ 797, 803, 904 и 906. Для сравнения изучали штатные трубы российского производства из сплава Э110, применяющегося для производства серийных твэлов ВВЭР-1000. Трубы Э110 были изготовлены по ТУ 95.405-81Е [3]. Исходные заготовки сплава КТЦ-110 были выплавлены на Приднепровском химическом заводе (ПХЗ, г. Днепропетровск), а твэльные трубы изготовлены в Днепропетровском государственном трубном институте (ГТИ, г. Днепропетровск) и Южнотрубном заводе (ЮТЗ, г. Никополь). Основным отличием

сплавов КТЦ-110 в сравнении со штатным сплавом Э110 являлось повышенное содержание примеси кислорода в КТЦ-110 [3, 4]. Кроме того, эти материалы, хотя и незначительно, различались и по концентрации ряда других примесей (табл.1).

Образцы для исследования кинетики окисления представляли собой отрезки твэльных труб с диаметрами наружным/внутренним 9,15/7,72 мм, толщиной стенки 0,71 мм и длиной 30...40 мм. В качестве образцов для механических испытаний использовали кольца из этих труб шириной 2,7 мм.

Механические испытания образцов проводили на установке 1246Р-2/2300, конструкции НИКИМПа при комнатной температуре и температуре 350 °С в вакууме, по методике испытаний кольцевых образцов циркониевых сплавов, разработанной совместно НТК «ЯТЦ» и ИФТТМТ ННЦ «ХФТИ» [4], которая была аналогична методике испытаний штатных твэльных труб [5].

Конструкция моделей твэлов представлена на рис.1. По основным конструктивным элементам модели твэлов повторяют конструкцию твэла промышленного варианта [3], но отличается меньшей длиной и отсутствием топливных таблеток внутри оболочки.

Вместо последних использованы стержни из нержавеющей стали Х18Н10Т. Модели