

# ИССЛЕДОВАНИЕ ДЕФОРМАЦИИ ПОЛЗУЧЕСТИ НА ОБРАЗЦАХ Zr-Nb-СПЛАВОВ (Zr-1%Nb и Zr-2,5%Nb) И НЕРЖАВЕЮЩЕЙ СТАЛИ ЭИ-847 ПРИ РЕЛАКСАЦИИ НАПРЯЖЕНИЙ

*С.П. Клименко, Т.П. Черняева, В.М. Грицина*

*Научно-технический комплекс «Ядерный топливный цикл» ННЦ ХФТИ,  
Харьков, Украина*

Проведено исследование деформации ползучести стали ЭИ-847 наряду с исследованием сплавов Zr-1%Nb (оболочечные трубы в состоянии поставки) и Zr-2,5%Nb (в трех структурных состояниях: каналные трубы в состоянии поставки, СВЧ-закаленные от 980 °С и СВЧ-закаленные с последующим отжигом при 580 °С). Метод исследований – релаксация напряжений от исходного (50...200 МПа) при температурах в интервале 350...500 °С на образцах сплавов Zr-1%Nb и Zr-2,5%Nb и 350...750 °С на образцах стали ЭИ-847. Установлено, что по сопротивлению ползучести при 350 °С сплавы Zr-1%Nb и Zr-2,5%Nb значительно уступают стали ЭИ-847, и это различие резко возрастает с повышением температуры. Определены значения энергии активации для исследованного интервала температур и напряжений: она равна 214 кДж/моль для сплава Zr-1%Nb и 330 кДж/моль для стали ЭИ-847, что практически совпадает с энергией активации процесса самодиффузии в этих материалах. Также определены значения активационного объема: для сплава Zr-1%Nb – 1,1 нм<sup>3</sup> и для ЭИ-847 – 1,5 нм<sup>3</sup>. Исходя из значений активационного объема, наиболее вероятным механизмом ползучести сплава Zr-1%Nb и стали ЭИ-847 в используемых режимах нагружения является переползание плюс скольжение.

## ВВЕДЕНИЕ

В связи с событиями на реакторе Фукусима-1 активизировались работы по замене циркониевых сплавов, характеризующихся интенсивной наработкой водорода в пароциркониевой реакции, на материалы с менее интенсивной наработкой водорода при авариях, к которым относятся аустенитные нержавеющие стали. Ползучесть циркониевых оболочек твэлов в реакторах с водой под давлением – одна из важнейших характеристик, определяющих их работоспособность. Целью работы является исследование ползучести методом релаксации напряжений при изгибе на образцах Zr-1%Nb и ЭИ-847 при нормальных условиях эксплуатации, а также при повышенных температурах, отвечающих отклонениям от нормальных условий эксплуатации, включая аварии с малой течью 380...750 °С, и начальных напряжениях 50...200 МПа. Для прогнозирования поведения сплавов в условиях нормальной эксплуатации в реакторе, при отклонении от нормальных условий эксплуатации и аварийных ситуациях, а также для выбора оптимального химического состава выполняются многочисленные исследования по установлению механизмов, контролирующих процесс пластического деформирования при ползучести, и математического описания этого процесса. В данной работе проведено исследование деформации ползучести стали ЭИ-847 наряду с исследованиями сплавов Zr-1%Nb (оболочечные трубы в состоянии поставки) и Zr-2,5%Nb (в трех структурных состояниях: каналные трубы в состоянии поставки, СВЧ-закаленные от 980 °С и СВЧ-закаленные с последующим отжигом при 580 °С). Метод исследований – релаксация напряжений от

исходного напряжения (50...200 МПа) при температурах в интервале 350...500 °С на образцах Zr-1%Nb и Zr-2,5%Nb и 350...750 °С на образцах ЭИ-847. Преимуществами данного метода исследования (релаксация напряжений при изгибе) являются: высокая точность измерений, возможность испытания нескольких образцов одновременно, исключительная простота, возможность выбора режима деформации в широком интервале напряжений и скоростей деформации в отличие от испытаний на растяжение, при которых задается определенная скорость деформации, и испытаний на ползучесть, в которых задается постоянная нагрузка. При изгибе удается избежать основного недостатка испытаний на релаксацию напряжений при растяжении – сложности и низкой точности замера малой деформации образца и поддержания ее неизменной в течение длительного времени. Ранее метод применялся для испытания образцов из сплава Zr-2,5%Nb с разной термообработкой [1]. В данной работе наряду со сравнением указанных выше материалов по их склонности к термической ползучести проведена оценка ряда активационных параметров, и на основе этого делается предположение о механизме деформации.

## 1. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКА

### 1.1. ОБРАЗЦЫ ДЛЯ ИСПЫТАНИЙ НА ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНУЮ ПОЛЗУЧЕСТЬ

Образцы сплава Zr-1%Nb представляют собой полоски размером 60×3×0,3 мм, вырезанные вдоль оси оболочечных труб Ø 9,1×0,65 мм в состоянии поставки (финальный отжиг при 580 °С в течение 3 ч).

Образцы сплава Zr-2,5%Nb представляют собой полоски 60×3×0,3 мм в состоянии поставки

(Zr-2,5%Nb), после СВЧ-закалки от 980 °С (СВЧ Zr-2,5%Nb) и после СВЧ-закалки с последующим отжигом (СВЧ™ Zr-2,5%Nb).

Образцы стали ЭИ-847 представляют собой полоски размером 60×3×0,3 мм, вырезанные из оболочечной трубы (в состоянии холодной деформации на 20 %).

## 1.2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Образцы для высокотемпературных испытаний на ползучесть подвергались плоскому изгибу. Образцы изгибались на оправках с заданным радиусом кривизны R, который и задавал уровень приложенных упругих напряжений (рис. 1). При изгибе концы образца фиксировали на оправке и в таком состоянии выдерживали определенное время при заданной температуре. Во время выдержки упругая деформация переходила в пластическую. Схема установки для исследования термической ползучести приведена на рис. 2.

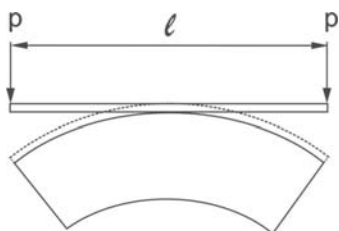


Рис. 1. Схематическое представление прямого чистого изгиба образца

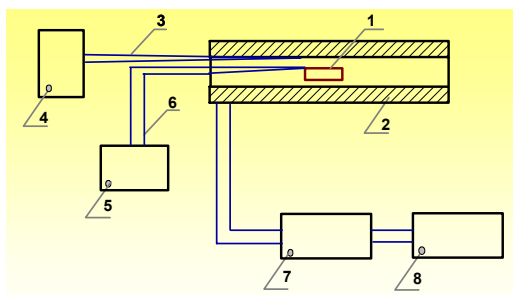


Рис. 2. Схема установки для исследования высокотемпературной ползучести: 1 – образец; 2 – печь нагрева; 3 – регулирующая термопара; 4 – высокоточный регулятор температуры; 5 – электронный автоматический потенциометр; 6 – измерительная термопара; 7 – автотрансформатор для регулировки температуры печи; 8 – амперметр

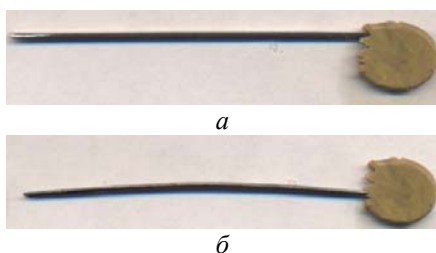


Рис. 3. Внешний вид образцов: исходный (а), после выдержки при заданной температуре (б)

После выдержки освобождали концы образца и с использованием компьютерного сканирования образцов и компьютерной обработки полученного отпечатка определяли стрелу прогиба (рис. 3).

## 1.3. МЕТОДИКА ОБРАБОТКИ РЕЗУЛЬТАТОВ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Напряжение в крайнем волокне  $\sigma(h/2)$  на образцах с фиксированной толщиной  $h$  в нескольких сборках с различным радиусом изгиба  $R$  (истинное напряжение) дается уравнением [2]:

$$\sigma(h/2) = 2/3 \sigma_u + (\Sigma/3) d\sigma_u / d\Sigma, \quad (1)$$

где  $\sigma_u = Eh/2(1/R_0 - 1/R_i)$  – напряжение, измеряемое в эксперименте;  $R_0$  – начальный радиус кривизны образца;  $R_i$  – радиус кривизны образца на момент времени  $t$  после снятия нагрузки;  $\Sigma = Eh/2R_0$  – начальное напряжение в крайнем волокне образца;  $E$  – модуль упругости.

$$d\sigma_u / d\Sigma = (\sigma_{u1} - \sigma_{u2}) / (\Sigma_1 - \Sigma_2). \quad (2)$$

Зависимость деформации ползучести от времени и напряжения:

$$\varepsilon_{пл} = k \sigma^n t^m, \quad (3)$$

где  $k$ ,  $n$ ,  $m$  – константы для данного материала и выбранных условий испытания. Истинное напряжение на поверхности образца определяется по формуле (1) (рис. 4, 5). Используя методику, описанную в работах [2, 3], получаем:

- для образцов ЭИ-847 при исходных напряжениях в интервале 52...100 МПа  $m=0,9$ ;  $n=3$ ;
- для образцов Zr-1%Nb при исходных напряжениях в интервале 100...160 МПа  $m=1$ ;  $n=3$ .

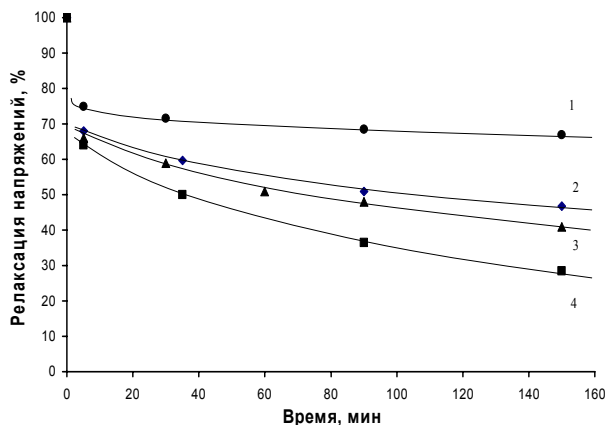


Рис. 4. Релаксация напряжений на образцах Zr-1%Nb.

Релаксационные кривые (2, 4) используются при определении активационного объема [6] и характеристик ползучести в уравнении (3):

- $n=3$ ,  $m=1$ ;  $\sigma_0 = \bullet$  – 100 МПа, эксп.,  
 $\blacklozenge$  – 100 МПа, ист.,  $\blacktriangle$  – 160 МПа, эксп.,  
 $\blacksquare$  – 160 МПа, ист.;  
 температура релаксации – 380 °С

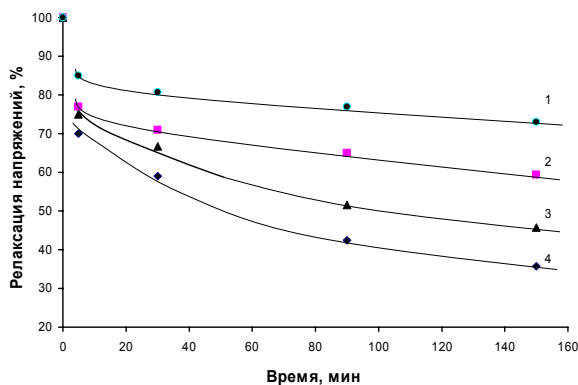


Рис. 5. Релаксация напряжений на образцах ЭИ-847. Релаксационные кривые (2, 4) используются при определении активационного объема [6] и характеристик ползучести в уравнении (3):  $n=3$ ,  $m=0,9$ ;  $\sigma_0 = \bullet$  – 52 МПа, эксп.,  $\blacksquare$  – 52 МПа, ист.,  $\blacktriangle$  – 100 МПа, эксп.,  $\blacklozenge$  – 100 МПа, ист.; температура релаксации – 650 °С

## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ ИСПЫТАНИЙ НА ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНУЮ ПОЛЗУЧЕСТЬ

Согласно результатам проведенных исследований установлено:

- с повышением температуры деформация ползучести увеличивается;
- с увеличением напряжения деформация ползучести также увеличивается;
- кривая деформации ползучести характеризуется начальной стадией с высокой скоростью деформации (в течение нескольких минут), а затем установившейся стадией со скоростью, близкой к постоянной (рис. 6, 7).

Для возможности сравнения на рис. 6 приведено значение деформации ползучести при релаксации напряжений на образцах Zr-1%Nb. Начальное напряжение – 100 МПа, температура испытания – 600...650 °С.

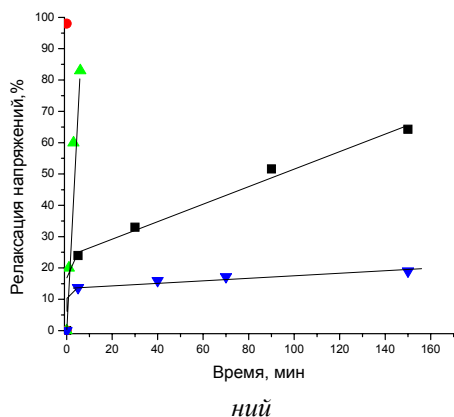


Рис. 6. Ползучесть при релаксации напряжений на образцах ЭИ-847. Исходное напряжение 100 МПа; температуры релаксации:  $\blacktriangle$  – 750 °С,  $\blacksquare$  – 650 °С,  $\blacktriangledown$  – 600 °С;  $\bullet$  – образцы Zr-1%Nb, температура релаксации – 600...650 °С

Перспективные сплавы – ЭИ-847, СВЧ-обработанный сплав Zr-2,5%Nb – имеют более высокое сопротивление ползучести при температу-

рах эксплуатации, чем сплав, используемый в настоящее время в качестве материала оболочек твэлов (Zr-1%Nb). При начальном напряжении 100 МПа и температурах нормальной эксплуатации в реакторе образцы Zr-1%Nb деформируются путем ползучести, в то время как на образцах ЭИ-847 и СВЧ-обработанного сплава Zr-2,5%Nb деформация ползучести отсутствует (рис. 7).

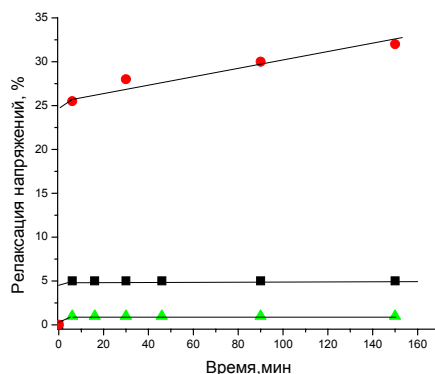


Рис. 7. Деформация ползучести при релаксации напряжений на образцах:  $\blacktriangle$  – СВЧ-обработанный сплав Zr-2,5%Nb;  $\bullet$  – сплав Zr-1%Nb (оболочечные трубы в состоянии поставки);  $\blacksquare$  – сплав ЭИ-847. Исходное напряжение – 100 МПа. Температура релаксации – 350 °С

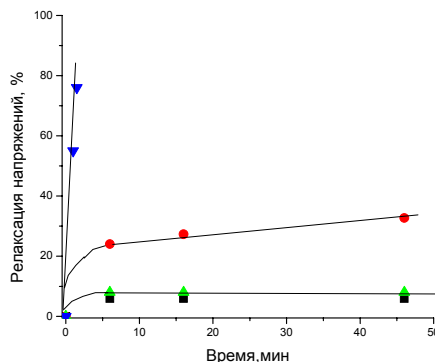


Рис. 8. Деформация ползучести при релаксации напряжений (начальное напряжение 100 МПа):  $\blacktriangledown$  – на образцах Zr-1%Nb,  $T=500$  °С;  $\bullet$  – на образцах Zr-1%Nb,  $T=380$  °С;  $\blacktriangle$  – на образцах ЭИ-847,  $T=500$  °С;  $\blacksquare$  – на образцах ЭИ-847,  $T=380$  °С. Релаксация при температурах: 380 и 500 °С

На образцах Zr-1%Nb и ЭИ-847 также проведены исследования деформации ползучести при релаксации напряжений и повышенных температурах, характерных для некоторых из аварийных ситуаций (рис. 8).

Из данных, представленных на рис. 8, видно, что образцы Zr-1%Nb при температурах в интервале 380...500 °С деформируются за счет термической ползучести, в то время как на образцах ЭИ-847 деформация ползучести отсутствует. Это говорит о том, что и при относительно высоких температурах, характерных для аварийных ситуаций, сплав ЭИ-847 имеет более высокое сопротивление ползучести, чем

Zr-1%Nb. Согласно имеющимся сведениям при отклонении от нормальных условий эксплуатации (при авариях) твэлы с оболочками из нержавеющей сталей имеют более высокую жизнеспособность, чем твэлы из циркониевых сплавов [4, 5].

Зависимость деформации ползучести от напряжения описывается степенной функцией. Показатель степени зависимости деформации ползучести от напряжения ( $n$ ) для сплавов Zr-1%Nb и ЭИ-847 равен  $\approx 3$ .

Активационный объем, определенный из релаксационных кривых, приведенных в разд. 1.3 данной работы и методике, описанной в работе [6] для температур и напряжений, используемых в данных исследованиях, для Zr-1%Nb равен  $1,1 \text{ nm}^3$ , что согласуется с работой [7]. Активационный объем для ЭИ-847 равен  $1,5 \text{ nm}^3$ . Такие значения активационного объема отвечают механизму: переползание плюс скольжение дислокаций [8].

Энергия активации определялась по результатам обработки, полученным в данной работе (рис. 9, 10), согласно методике, приведенной в работе [9]. Энергия активации деформации ползучести на образцах Zr-1%Nb при температурах в интервале  $350 \dots 500 \text{ }^\circ\text{C}$  равна  $214 \text{ кДж/моль}$ , что хорошо согласуется с опубликованными результатами для циркониевых сплавов. Энергия активации деформации ползучести на образцах ЭИ-847 при температурах в интервале  $600 \dots 750 \text{ }^\circ\text{C}$  равна  $330 \text{ кДж/моль}$ . Полученные значения энергии активации близки к значениям энергии активации самодиффузии в данных материалах.

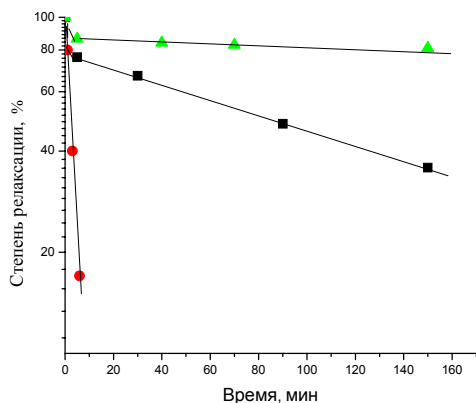


Рис. 9. Релаксация напряжений на образцах ЭИ-847 при различных температурах:  $\blacktriangle$  –  $600 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $\blacksquare$  –  $650 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $\bullet$  –  $750 \text{ }^\circ\text{C}$ .  
Исходное напряжение –  $100 \text{ МПа}$

Также проведены исследования деформации ползучести на образцах Zr-2,5%Nb в трех структурных состояниях: каналные трубы в состоянии поставки, СВЧ-закаленные от  $980 \text{ }^\circ\text{C}$  и СВЧ-закаленные с последующим отжигом при  $580 \text{ }^\circ\text{C}$ . Исследована деформация ползучести при релаксации напряжений от исходного напряжения  $200 \text{ МПа}$  при температурах в интервале  $350 \dots 400 \text{ }^\circ\text{C}$ . На рис. 11 приведена зависимость деформации ползучести материала от времени для Zr-2,5%Nb в трех указанных состояниях.

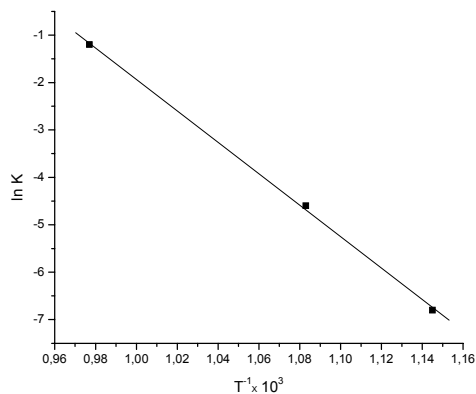


Рис. 10. Температурная зависимость кинетического коэффициента  $K$

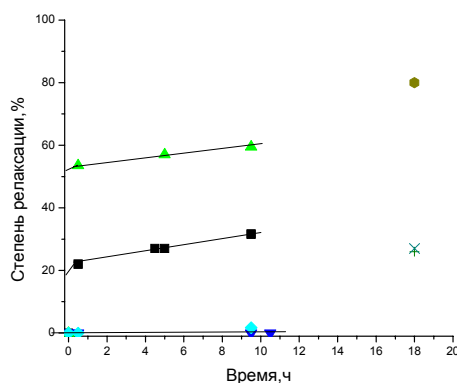


Рис. 11. Зависимость деформации ползучести от времени на образцах Zr-2,5%Nb в трех структурных состояниях:  $\blacktriangle$  – исходном,  $T_p=360 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $\blacklozenge$  – СВЧ-закаленном с последующим отжигом при  $580 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $T_p=360 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $\blacktriangledown$  – СВЧ-закаленном с последующим отжигом при  $580 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $T_p=375 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $\blacksquare$  – СВЧ-закаленном,  $T_p=360 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $\times$  – исходное состояние,  $T_p=300 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $+$  – СВЧ-закаленном с последующим отжигом при  $580 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $T_p=400 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $\bullet$  – исходный материал,  $T_p=400 \text{ }^\circ\text{C}$

Из данных рис. 11 следует:

1. При  $375 \dots 360 \text{ }^\circ\text{C}$  и исходном напряжении  $200 \text{ МПа}$  образцы Zr-2,5%Nb, СВЧ-закаленные с последующим отжигом при  $580 \text{ }^\circ\text{C}$ , не деформировались в отличие от образцов Zr-2,5%Nb в исходном и СВЧ-закаленном состоянии, деформирующихся со значительной скоростью.

2. После 18 ч релаксации при  $400 \text{ }^\circ\text{C}$  ( $\sigma_{\text{исх}} = 200 \text{ МПа}$ ) деформация на образцах Zr-2,5%, СВЧ-закаленных с последующим отжигом при  $580 \text{ }^\circ\text{C}$ , близка к деформации на образцах в исходном состоянии после 18 ч релаксации при  $300 \text{ }^\circ\text{C}$ , но значительно меньше, чем деформация на образцах Zr-2,5% в исходном состоянии после 18 ч релаксации при температурах  $400$  и  $360 \text{ }^\circ\text{C}$ , при этом несколько больше, чем на образцах ЭИ-847 после 18 ч релаксации при  $500 \dots 600 \text{ }^\circ\text{C}$ . Повышение сопротивления ползучести может быть связано с мелкодисперсными выделениями  $\beta\text{-Nb}$ , расстояние между которыми столь маленькое, что не допускает выгибания дислокаций вокруг частиц [10]. При СВЧ-термообработке (СВЧ-закалка и последующий

отжиг при 580 °С) концентрация выделений (размером 35...45 нм) в сплаве Zr-2,5%Nb увеличивается на 2...3 порядка [11].

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Определены значения энергии активации и активационного объема для сплавов ЭИ-847 и Zr-1%Nb. Проведенные исследования позволяют сделать вывод, что в исследуемых диапазонах температур и напряжений наиболее вероятным механизмом деформации в исследованных материалах является переползание плюс скольжение дислокаций.

2. Установлено, что по сопротивлению ползучести при 350 °С сплавы Zr-1%Nb и Zr-2,5%Nb значительно уступают стали ЭИ-847, и это различие резко возрастает с повышением температуры. Таким образом, с точки зрения сопротивления ползучести сплав Zr-1%Nb уступает стали ЭИ-847, как в условиях нормальной эксплуатации, а тем более при более высоких температурах, характерных для аварийных ситуаций.

## БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. А.Р. Завьялов, А.С. Займовский. Влияние химического состава и микроструктуры на сопротивление ползучести циркониевых сплавов // *Реакторное материаловедение*. Харьков: ХФТИ, 1978, т. 6, с.154-173.

2. F. Povoilo and E.H. Toscano. The determination creep constant from stress-relaxation measurements in bending and torsion // *J. Nucl. Mater.* 1977, v. 68, p. 308-314.

3. Г.Ф. Лепин. *Ползучесть металлов и критерий жаропрочности*. М.: «Металлургия», 1976, 343 с.

4. Е.М. Пирогов, О. Б. Комаров, М.Н. Алымов. Ползучесть полностью рекристаллизованного и холоднодеформированного сплава Zr-1%Nb при быстром нагреве // *Атомная энергия*. 1989, т. 66, в. 4, с. 248-253.

5. Е.М. Пирогов, А.Б. Анкудинов, О.М. Комаров, Л.Л. Артюхина, В.И. Егоров. Исследование и прогнозирование деформационного поведения оболочечных материалов при быстром нагреве // *Радиационное материаловедение*. Харьков: ХФТИ, 1991, т. 8, с. 172-176.

6. J.L. Martin, T. Kruml. Characterizing thermally activated dislocation mobility // *Journal of Alloys and Compounds*. 2004, v. 378, p. 2-12.

7. В.М. Ажажа, И.Н. Бутенко, П.Н. Вьюгов. Механические свойства сплава Zr-1%Nb в интервале температур 300...770 К // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2007, №4, с. 79-81.

8. K.I. Chang, S.I. Hong. Effect of sulphur on strengthening of a Zr-Nb alloy // *J. Nucl. Mater.* 2008, v. 280, p. 16-21.

9. Д.А. Мирзаев, Чжоу Цзюнь, И.Л. Яковлева, Б.В. Баричко. Релаксация упругих напряжений при отжиге деформированного нейзильбера // *Известия Челябинского научного центра*. 2004, в. 1(22), с. 96-100.

10. Р. Хоникомб. *Пластическая деформация металлов*. М.: «Мир», 1972, 408 с.

11. А.И. Стукалов, В.М. Грицина, Т.Н. Черняева, В.Н. Воеводин, Л.С. Ожигов, Н.И. Рагулина, В.И. Савченко, Д.Г. Мальхин. *Воздействие СВЧ-термообработки на структурно-фазовое состояние и механические свойства сплава Zr-2,5%Nb*: Препринт. Харьков: ННЦ ХФТИ, 1999, 56 с.

Статья поступила в редакцию 06.09.2012 г.

## ДОСЛІДЖЕННЯ ДЕФОРМАЦІЇ ПОВЗУЧОСТІ НА ЗРАЗКАХ Zr-Nb-СПЛАВІВ (Zr-1%Nb ТА Zr-2,5%Nb) ТА НЕРЖАВІЮЧОЇ СТАЛІ EI-847 ПРИ РЕЛАКСАЦІЇ НАПРУЖЕНЬ

*С.П. Клименко, Т.П. Черняева, В.М. Грицина*

Проведено дослідження деформації повзучості сталі EI-847, нарівні з дослідженнями сплавів Zr-1%Nb (оболонкові труби в стані постачання) та Zr-2,5%Nb (в трьох структурних становищах: каналні труби в стані постачання, СВЧ-загартовані від 980 °С і СВЧ-загартовані з послідуочим випалюванням при 580 °С). Встановлено, що по опору повзучості при 350 °С сплави Zr-1%Nb та Zr-2,5%Nb значно поступаються сталі EI-847, і ця різниця різко зростає з підвищенням температури. Виходячи зі значень енергії активації та активационного об'єму найбільш імовірним механізмом повзучості сплава Zr-1%Nb і сталі EI-847 в використуваних режимах навантаження є переповзання плюс ковзання.

## INVESTIGATION OF CREEP STRAIN ON Zr-Nb SAMPLES (Zr-1%Nb AND Zr-2,5%Nb) AND EI-847 STEEL SAMPLES UNDER STRESS RELAXATION

*S.P. Klimenko, T.P. Chernyayeva, V.M. Grytsyna*

This work presents a study of the EI-847 steel creep strain along with investigations of Zr-1%Nb alloys (as-received cladding tubes) and Zr-2,5%Nb alloy (in three structural conditions: as-received channel tubes, SHF-quenched channel tubes at temperatures from 980 °C, and SHF-quenched channel tubes subsequently annealed at 580 °C). The creep resistance of Zr-1%Nb and Zr-2,5%Nb alloys at 350 °C has been found to be much lower than that of EI-847 steel, and this difference increases considerably with temperature. Based on the activation energy and activation volume values, the most probable creep mechanism for Zr-1%Nb and EI-847 steel in the applied loading conditions is "climb-plus glide".