

ПРОБЛЕМЫ СОЗДАНИЯ ПРОИЗВОДСТВА ЦИРКОНИЕВОГО ПРОКАТА В УКРАИНЕ

В.С. Вахрушева

Приднепровская государственная академия строительства и архитектуры,

Днепропетровск, Украина

E-mail: v.vahrusheva@mail.ru

Приведены основные результаты работ по созданию в Украине производства циркониевого проката. Представлены новые элементы технологической схемы изготовления труб-оболочек твэлов из циркониевого сплава украинского производства Zr1Nb. Рассмотрены результаты оценки качества опытных партий труб, изготовленных в промышленных условиях. По основным показателям качества трубы-оболочки соответствуют требованиям российских технических условий и стандартам ASTM. Рассмотрены основные проблемы и пути создания производства циркониевого проката.

В числе важнейших государственных проблем определено создание ядерно-топливного цикла (ЯТЦ) в Украине как основы роста существенного вклада атомной энергетики в энергетическом балансе государства [1]. Составной частью создания ЯТЦ является организация производства циркониевого проката – труб-оболочек тепловыделяющих элементов (твэлов) и комплектующих изделий тепловыделяющих сборок (ТВС). Эта проблема приобретает особую актуальность в связи с решением правительства о строительстве завода по производству ядерного топлива.

В Украине на базе Государственного предприятия «Научно-исследовательский и конструкторско-технологический институт трубной промышленности им. Я.Е. Осады» (ГП НИТИ) выполнены работы по разработке технологии и изготовлению труб-оболочек и комплектующих ТВС изделий из циркониевого сплава Zr1Nb украинского производства.

За время проведения работ этого направления в рамках программы создания ЯТЦ проведен следующий комплекс работ:

- разработаны основные технологические схемы опытно-промышленного производства труб-оболочек и прутков применительно к отечественной производственной базе;

- изготовлены несколько опытных партий труб-оболочек твэлов из сплава Zr1Nb украинского производства на различных трубных заводах Украины в условиях промышленного производства;

- проведена комплексная оценка качества опытных партий труб, подтверждающая их соответствие по основным показателям требованиям нормативной документации (Техническим условиям России и стандартам ASTM);

- разработан и утвержден пакет первых версий нормативной документации на производство труб и прутков (ТУ на опытные партии труб и прутков, технологические инструкции, методики контроля);

- разработан комплекс мероприятий и технических решений по модернизации действующего и

приобретению нового оборудования, обеспечивающего эффективность технологического процесса и качества продукции;

- определена принципиальная технологическая схема промышленного производства циркониевого проката в Украине.

В рамках выполненных работ предложена технологическая схема изготовления труб-оболочек твэлов с использованием новых элементов:

- литой трубной заготовки, полученной различными способами выплавки: электронно-лучевым, вакуумно-дуговым и центробежным литьем;

- высокотемпературного прессования в β -области литых трубных заготовок с большими степенями деформации;

- закалки с прокатного нагрева.

В условиях украинских трубных заводов в промышленных условиях прокатаны пять опытных партий труб-оболочек, прутков, комплектующих ТВС.

К новым элементам технологической схемы производства труб в первую очередь следует отнести получение и использование литых трубных заготовок \varnothing 150...200 и 80 мм, изготовленных различными способами: электронно-лучевым переплавом (ЭЛП) с электромагнитным перемешиванием, вакуумно-дуговым переплавом (ВДП), а также центробежным литьем (ЦБЛ).

Литые трубные заготовки всесторонне исследованы: оценена макро- и микроструктуры, химический состав, механические свойства, твердость. Выполнена количественная металлография и электронно-микроскопические исследования [2].

На рис. 1 и 2 показаны макро- и микроструктуры литых заготовок различных способов выплавки.

Макроструктура сплава Zr1Nb, выплавленного ВДП, в сравнении с ЭЛП более однородная, мелкозернистая, о чем свидетельствуют размеры пакетов пластин α -циркония, β -ниобия и их периодичность (рис. 3).

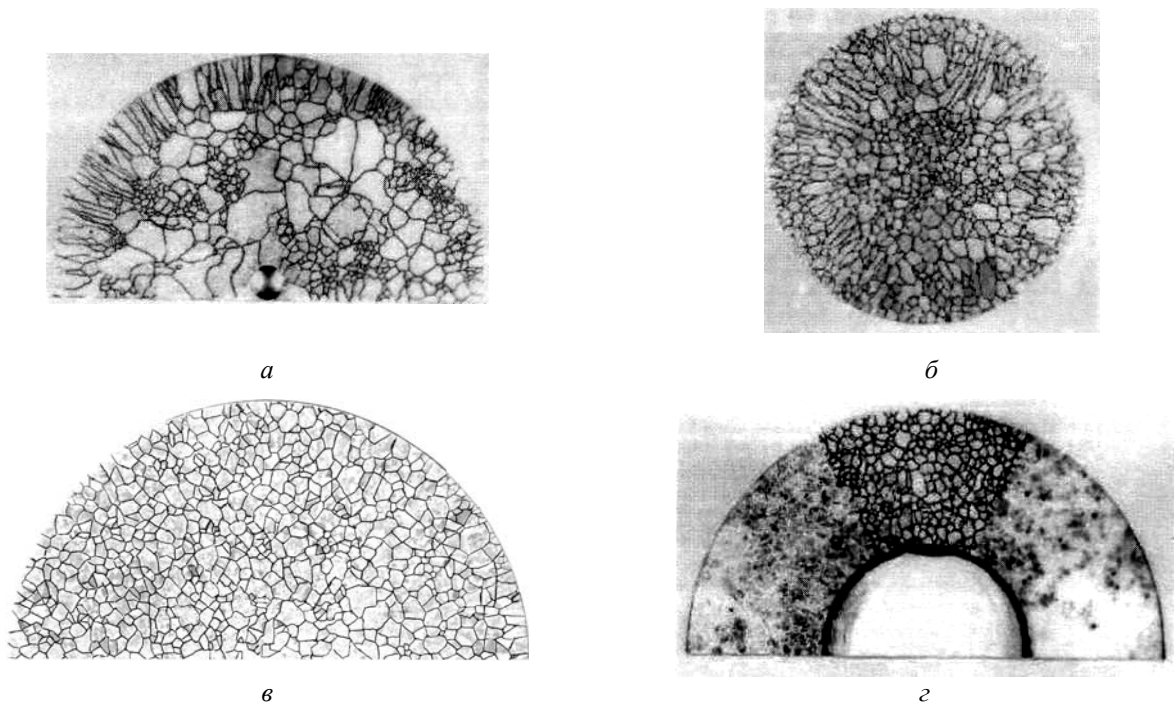


Рис. 1. Макроструктуры литых трубных заготовок различных способов выплавки:
a – ЭЛП; *б* – гарнисажная плавка с электромагнитным перемешиванием (ГЭМП); *в* – ВДП; *д* – ЦБЛ

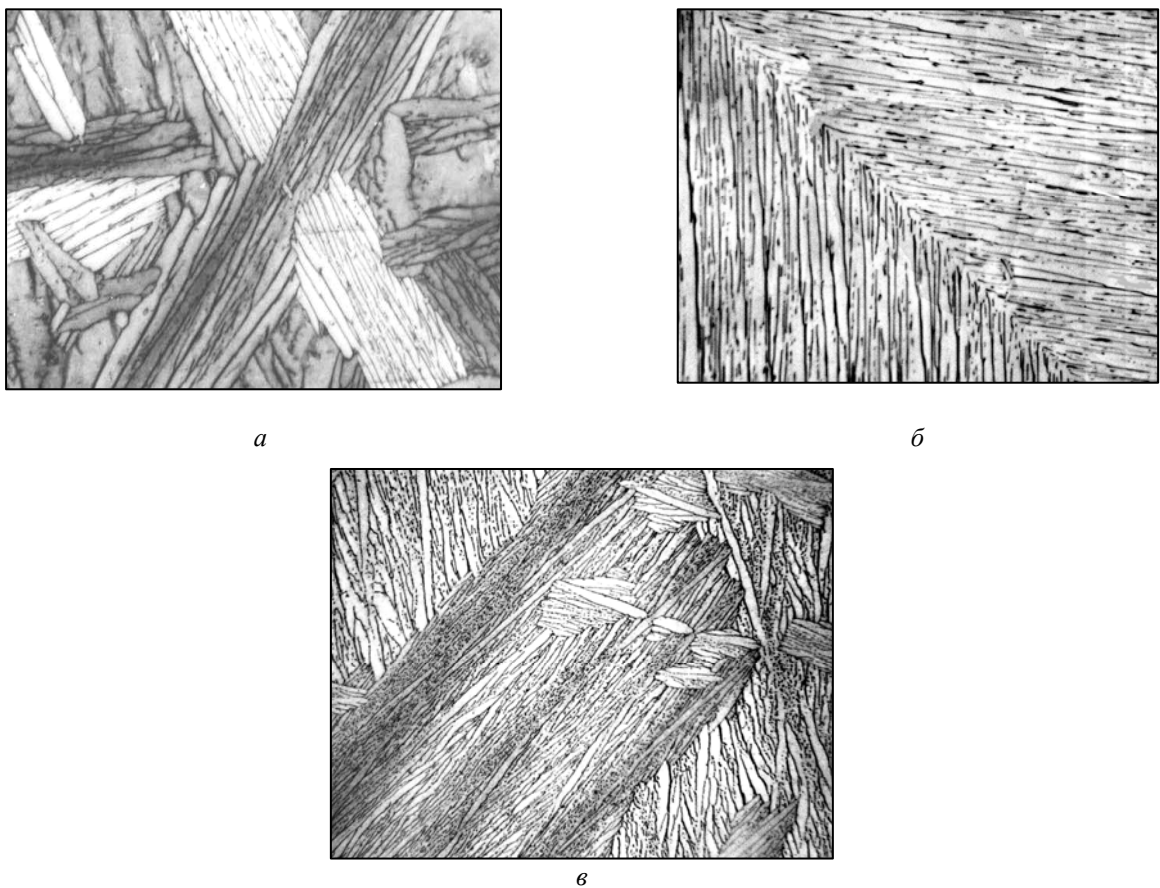
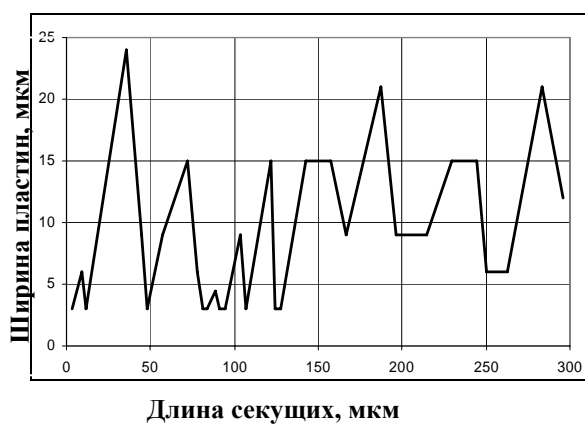
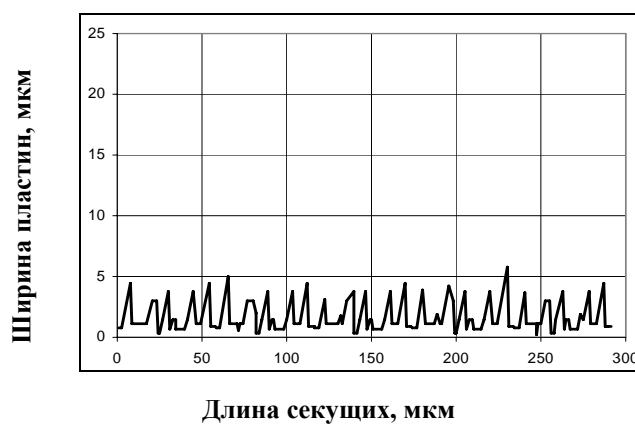


Рис. 2. Микроструктуры литых трубных заготовок различных способов выплавки:
a – ЭЛП; *б* – ГЭМП; *в* – ВДП



а



б

Рис. 3. Распределение ширины пластин в пакетной структуре слитков разных способов выплавки: а – ЭЛП; б – ВДП

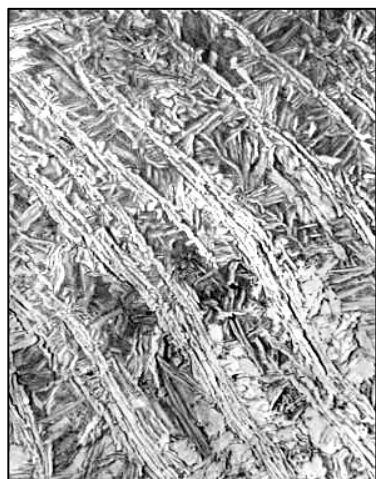
В структуре литых заготовок, полученных способом ВДП, размер пластин и период чередования групп в пакетах меньше в несколько раз (6...8 мкм) в сравнении с заготовками ЭЛП (20...30 мкм).

Характеристики ЦБЛ трубных заготовок по тем же показателям занимают промежуточные значения между ЭЛП и ВДП.

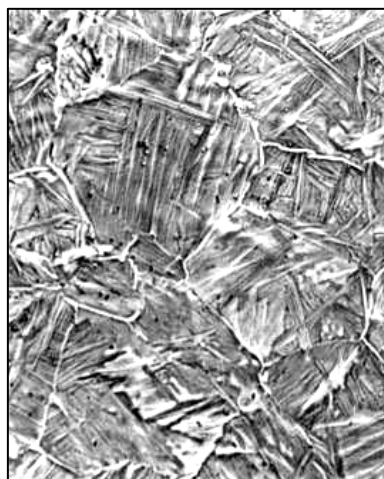
Особое внимание при разработке технологической схемы изготовления труб было уделено горячему переделу литых трубных заготовок [3]. Новому решению о высокотемпературном прессовании в β -области с большими пластическими деформациями предшествовал комплекс исследований по влиянию температуры деформации, скорости нагрева, степени вытяжки (деформации) металла, качества

покрытий, оценки величины газонасыщенного слоя и др. Оценка свойств структуры металла различными методами, в том числе и с использованием акустической эмиссии, позволила выбрать оптимальные температуры и степени деформации металла при горячем прессовании.

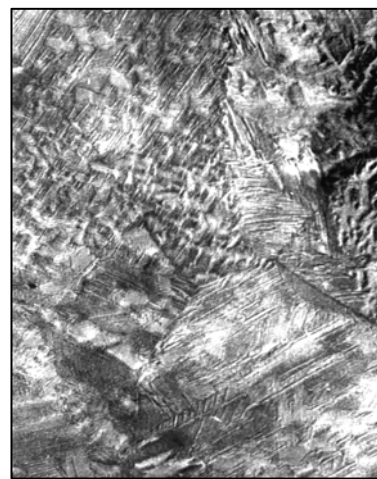
На рис. 4 приведена структура металла горячепрессованных труб при температурах деформации в интервале 850...1100 °С. Структура металла труб $\varnothing 59 \times 12$ мм (трекс-труб) различна – от неперекристаллизованной деформации, полученной при температуре 850 °С (см. рис. 4,а), до бейнитной (см. рис. 4,б) и мартенситной (см. рис. 4,в).



а



б



в

Рис. 4. Структура горячепрессованных труб, деформированных при температурах β -области, $\times 400$

Исследование механических свойств, акустоэмиссионных характеристик показало, что оптимальной температурой деформации является температура 1050 °С (рис. 5).

При изготовлении труб-оболочек твэлов из циркониевых сплавов значительное влияние на поведение металла в процессе холодной деформации оказывает уровень пластичности, который определяется структурным состоянием, полученным на стадии горячей деформации. Технология, разработанная в ГП НИТИ, позволяет за один цикл горячего прессо-

вания получить трекс-трубы с однородной, мелкодисперсной структурой [4]. Это создает предпосылки для повышения степени деформации при прокатке труб на первом холодном переделе.

В процессе исследования установлено, что формирование при горячей деформации структуры мартенситного типа обеспечивает более высокую технологическую пластичность на первом холодном переделе.

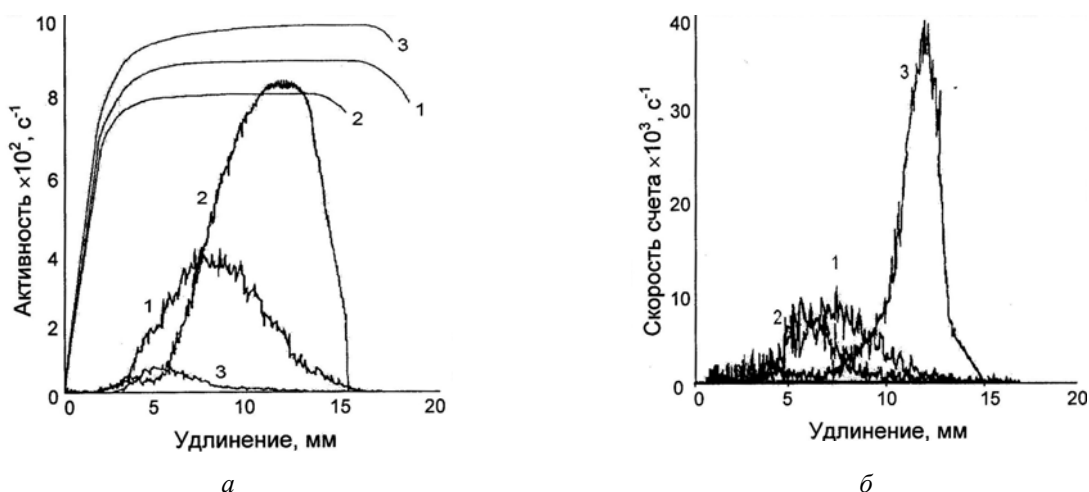


Рис. 5. Деформационные кривые активности (а) и скорости счета АЭ (б), полученные при растяжении образцов горячепрессованных труб с различными типами структуры: 1 – мартенситным; 2 – бейнитным и 3 – полностью перекристаллизованным

Комплексная оценка качества труб-оболочек твэлов, прокатанных с использованием новых элементов технологии, показала, что трубы по основным параметрам соответствуют требованиям российских технических условий, а также стандартам ASTM [5].

При исследовании качества труб-оболочек, изготовленных в Украине из украинского сырья, проведены сравнительные исследования труб из сплава Э-110 российского производства и Zr1Nb – украинского.

Кроме традиционных испытаний, регламентируемых техническими условиями, таких как:

- оценка геометрических размеров;
- оценка механических свойств при комнатной и повышенной температурах в продольном и поперечном направлениях;
- коррозионные испытания в паре при давлении;
- оценка ориентации гидридов;
- определение коэффициента анизотропии;
- ультразвуковой контроль;
- вихрековый контроль;
- оценка шероховатости поверхности;

– наличие ионов фтора на поверхности, выполнены дополнительные исследования:

- малоциклового усталости;
- ползучести;
- длительных испытаний коррозионной стойкости;
- электронно-микроскопические;
- растровой электронной микроскопии для оценки качества поверхности;
- акустоэмиссионные для определения предельных деформаций и трещиностойкости.

Анализируя полученные результаты исследований качества труб-оболочек, необходимо отметить следующее.

Исследования механических свойств труб, испытанных при растяжении в продольном и поперечном направлениях при температурах 20 и 350 °С, показали высокую пластичность при высоком уровне прочностных характеристик, значительно превышающих требования стандартов ASTM и ТУ России (таблица).

Механические свойства труб-оболочек размером 9,13 × вн. 7,72 мм из сплава Zr1Nb

Завод-изготовитель	Механические свойства					
	Продольное направление			Поперечное направление		
	Предел прочности σ_B , Н/мм ²	Предел текучести $\sigma_{0,2}$, Н/мм ²	Относительное удлинение σ , %	Предел прочности σ_B , Н/мм ²	Предел текучести $\sigma_{0,2}$, Н/мм ²	Относительное удлинение σ , %
Температура испытаний 20 °С						
ОЗ ГТИ	580...590	415...425	34...36	550...600	500...533	16,1...16,7
ОАО НПТЗ	615...650	480...495	30...33	605...650	560...595	13...13,3
Требования ТУ 95-405-89 не менее	410	240	20	–	–	12
Температура испытаний 380 °С						
ОЗ ГТИ	–	–	–	226...235	222...226	27...30
ОАО НПТЗ	235...265	135...153	530...560	225...240	190...200	27...36
Требования ТУ 95-405-89 не менее	–	80	–	148	130	33

Более высокий уровень механических свойств обусловлен во многом повышенным содержанием

кислорода в сплаве Zr1Nb (0,12...0,16%). Проведенными в НИЦ ХФТИ исследованиями на уровне

электронной микроскопии установлено, что это положительно влияет на поведение металла при облучении [6].

Коррозионные испытания проведены по различным режимам в сравнении с трубами из сплава Э-110 производства России. Значения привеса на образцах труб украинского производства различных плавок и способов изготовления близки как между собой, так и к сплаву российского производства и

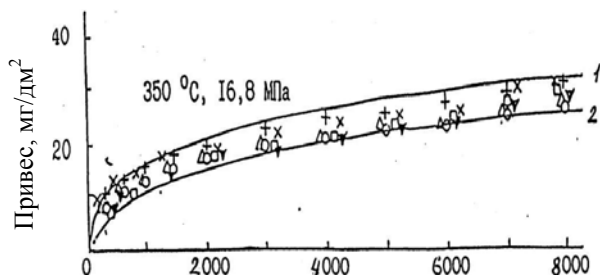


Рис. 6. Кинетика коррозии образцов опытных партий труб-оболочек твэлов из сплавов: 1 – Zr1Nb и 2 – Э-110

Оценка малоциклового усталости, выполненная периодическим деформированием кольцевых образцов (сжатием–растяжением) при заданной величине относительной деформации $8,4 \cdot 10^{-3}$, показала, что образцы из сплава Zr1Nb имеют примерно одинаковый со сплавом Э-110 уровень количества циклов до разрушения.

Исследования длительной прочности и ползучести нагружением от 157 до 227 МПа и $T_{исп} = 380$ °C показали более высокую пластичность сплава Zr1Nb при испытаниях на сопротивление ползучести. Время до разрушения – момента появления первых микротрещин при $P = 157$ МПа, труб из сплава Zr1Nb составило 1206 ч, средняя скорость ползучести $\varepsilon = 3 \cdot 10^{-4} \% \cdot \text{ч}$, а из сплава Э-110 – 1170 ч при $\varepsilon = 5 \cdot 10^{-3} \% \cdot \text{ч}$ (рис. 7).

Микроструктура готовых труб оценена с использованием оптической и электронной микроскопии независимо от технологических вариантов производства и представляет собой равноосные рекристаллизованные зерна α -фазы с дисперсными включениями β -Nb-фазы (рис. 8), размер зерна 3...10 мкм.

Процессы рекристаллизации прошли в полном объеме, что подтверждено электронно-микроскопическими исследованиями.

Большинство зерен (90%) ориентировано базисной плоскостью (0001) почти параллельно поверхности трубы, что показывают данные исследования текстуры [7].

Средний коэффициент ориентации гидридов в прокатанных трубах составляет 0,2...0,35 (рис. 9).

Опытные партии труб использовались для изготовления моделей твэлов, которые испытывали в условиях, приближенных к реакторным. Все модели выдержали испытания.

составляют 14...16 мг/дм³, что не превышает значений, требуемых ТУ и стандартами ASTM*.

Анализ кинетики коррозии металла труб из сплавов Zr1Nb и Э-110 по трем различным режимам автоклаивирования показал, что скорости коррозии близки для исследуемых материалов. Дополнительный режим испытаний в течение 72, 500, 1000 ч не выявил признаков нодулярной коррозии очагов разрушения и побеления поверхности (рис. 6).

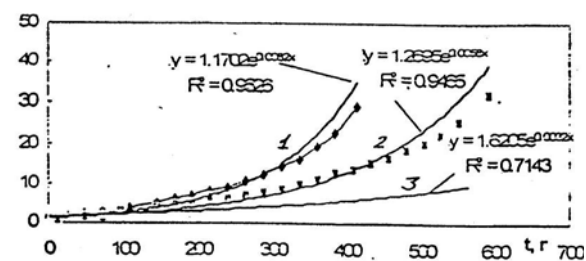
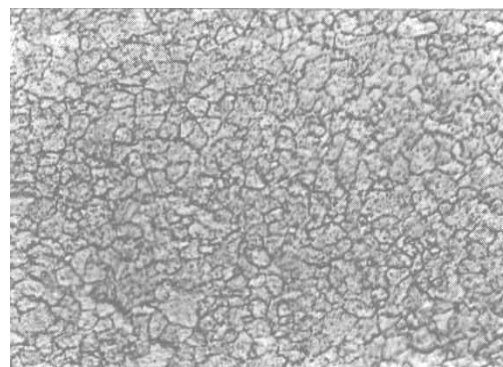
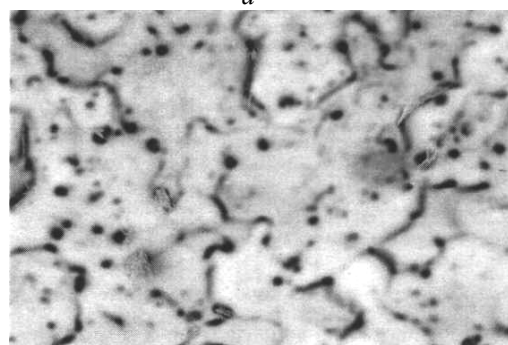


Рис. 7. Кривые ползучести образцов труб-оболочек твэлов из сплавов: 1 – КТЦ-110 ($\sigma = 221$ МПа); 2 – КТЦ-110 ($\sigma = 219$ МПа); 3 – Э-110 ($\sigma = 119$ МПа)



а



б

Рис. 8. Микроструктура (а), $\times 200$ и выделения второй фазы (б), $\times 1000$ в трубах размером 9,13 \times вн. 7,72 мм из сплава Zr1Nb

Выше кратко изложены основные результаты выполненных работ по разработке технологии циркониевого проката. Не отражен целый комплекс работ по выплавке заготовки, химической обработке, расчетам калибровок инструмента, акустоэмиссионным исследованиям и выбору предельных степеней деформации, исследованиям трещиностойкости и др.

*Исследования выполнены в НИЦ ХФТИ И.А. Петельгузовым.

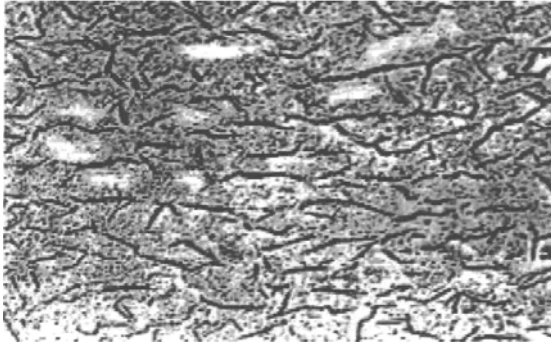


Рис. 9. Ориентация гидридов в металле труб размером 9,13 × вн. 7,72 мм из сплава Zr1Nb

К сожалению, на протяжении последних лет работы этого направления в Украине прекращены.

Опытный завод трубного института (ОЗ ГТИ, а затем ДЗПТ), на котором предполагалось разместить производство циркониевого проката и других видов труб для нужд атомной энергетики, уничтожен полностью, да и трубный институт (ГП «НИТИ им. Я.Е. Осады») находится в критическом состоянии.

В Украине еще сохранился научный и производственный потенциал, который необходимо использовать в ближайшее время. Так, производство циркониевого проката возможно разместить в г. Никополе на заводе ПО ОСКАР (бывший цех по производству труб для атомной энергетики ТВЦ-4 ЮТЗ).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполненные исследования позволили разработать принципиальную технологическую схему изготовления циркониевого проката: труб-оболочек твэлов прутков из сплава циркония. Создана первая версия нормативной документации.

При государственном подходе в условиях принятого решения о строительстве завода по производству ядерного топлива и наличии сырьевой базы циркония не следует отодвигать на десятилетия создание производства комплектующих изделий для изготовления ТВС, в первую очередь труб-оболочек твэлов. Необходимо использовать достижения украинской научной школы в области получения сплавов циркония и проката из них.

Первоочередными задачами для организации производства циркониевого проката являются:

1 – получение циркониевой губки и слитков из нее;

2 – создание производственных мощностей для производства слитков и трекс-трубы;

3 – реконструкция и приобретение оборудования для проката и контроля качества труб-оболочек твэлов на предприятии ПО ОСКАР;

4 – возобновление научно-исследовательских работ по сопровождению организации производства циркония, его сплавов и проката из них в Украине.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. И.М. Неклюдов. Состояние и проблемы атомной энергии в Украине // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2007, №2, с. 3-9.

2. В.С. Вахрушева, Г.Д. Сухомлин, О.А. Коленкова. Особенности процессов структурообразования в сплавах циркония с ниобием в литом и горячедеформированном состояниях // *Металознавство та термічна обробка металів*: Науков. інформ. журнал ПДАБА. Днепропетровск, 2002, №2-3, с. 11-18.

3. О.А. Коленкова, В.С. Вахрушева, Т.Н. Буряк и др. Влияние способа получения литой трубной заготовки на структуру и свойства горячепрессованных труб из сплава Zr1Nb // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Вакуум, чистые материалы, сверхпроводники»*. 2002, №1, с. 93-95.

4. В.С. Вахрушева, О.А. Коленкова. Вплив структури на пластичність та параметри акустичної емісії в процесі деформування труб // *Металознавство та обробка металів*. 2005, №1, с. 39-45.

5. В.С. Вахрушева, Г.Д. Сухомлин, Т.А. Дергач. Комплексная оценка качества изготовленных в Украине первых опытных партий труб-оболочек твэл из сплава Zr1Nb // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 1999, №2(77), с. 27-32.

6. О.В. Бородин, В.В. Брык, Р.Л. Василенко, В.Н. Воеводин, И.А. Петельгузов, Н.Д. Рыбальченко. Влияние содержания кислорода на эволюцию микроструктуры сплава Zr1Nb при ионном облучении // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2008, №2, с. 53-61.

7. Г.М. Воробьев, В.С. Вахрушева, О.А. Коленкова. Параметры Кернса и однородность текстуры по толщине стенки труб из сплава Zr1Nb, изготовленного в Украине // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2003, №3, с. 92-95.

Статья поступила в редакцию 26.03.2014 г.

ПРОБЛЕМИ СТВОРЕННЯ ВИРОБНИЦТВА ЦИРКОНІЄВОГО ПРОКАТУ В УКРАЇНІ

V.S. Vakhrusheva

Приведено основні результати робіт із створення в Україні виробництва цирконієвого прокату. Представлено нові елементи технологічної схеми виготовлення труб-оболонок твелів з цирконієвого сплаву українського виробництва Zr1Nb. Розглянуто результати оцінки якості дослідних партій труб, виготовлених в промислових умовах. За основними показниками якості труби-оболонки відповідають вимогам російських технічних умов і стандартам ASTM. Розглянуто основні проблеми і шляхи створення виробництва цирконієвого прокату.

PROBLEMS OF ESTABLISHING OF PRODUCTION OF ROLLED ZIRCONIUM IN UKRAINE

V.S. Vakhrusheva

The main results of works on creation of in Ukraine production of zirconium products. Some new elements of the technological scheme of manufacturing zirconium fuel cladding tubes of zirconium alloy of Ukrainian origin Zr1Nb. The results of evaluation of the quality of experimental batches of tubes made in industrial settings. On key dimensions of the tubes comply with Russian technical specifications and ASTM standards. Discussed the main problems and the creation of production of rolled zirconium.