

ВЛИЯНИЕ СОДЕРЖАНИЯ КИСЛОРОДА НА ПЛАСТИЧНОСТЬ, ПОВРЕЖДАЕМОСТЬ И ПАРАМЕТРЫ АКУСТИЧЕСКОЙ ЭМИССИИ МЕТАЛЛА ТРУБ ИЗ СПЛАВА Zr-1%Nb

*В.С. Вахрушева, О.А. Коленкова, Г.Д. Сухомлин
Государственный трубный институт им. Я.Ю. Осады,
г. Днепрпетровск, Украина*

Исследовали структуру, механические характеристики и акустоэмиссионные спектры, записанные в процессе растяжения образцов горячедеформированных труб из сплава Zr-1%Nb с содержанием кислорода 0,06...0,18%. Обнаружена явная взаимосвязь между динамикой процессов деформации в металле с различным содержанием кислорода и параметрами акустической эмиссии (АЭ), а также накоплением необратимых дефектов (пор). Показано, что метод АЭ более чувствителен к изменению содержания кислорода, чем механические характеристики. Исследования показали, что метод акустической эмиссии может быть успешно применен для оценки технологической пластичности и повреждаемости металла, а также для корректировки маршрутов холодной прокатки при изготовлении труб из циркониевых сплавов.

ВВЕДЕНИЕ

Циркониевые сплавы нашли широкое применение в атомной энергетике благодаря уникальному сочетанию механических, коррозионных и ядерно-физических свойств [1].

Одним из элементов, оказывающих значительное влияние на свойства циркониевых сплавов, является кислород. В промышленных сплавах циркония кислород присутствует в виде неизбежных примесей, а также вводится в качестве легирующего элемента для управления структурой и свойствами материала. При этом влияние кислорода неоднозначно. Изучению влияния кислорода на свойства циркониевых сплавов и поведение материала под облучением посвящено большое количество работ [1-7]. Установлено, что сегрегация примесей внедрения повышает риск разрушения в процессе эксплуатации [2]. С другой стороны, благодаря своему упрочняющему действию кислород способствует повышению длительной устойчивости и сопротивления ползучести под облучением [3,4]. Так, кислород вводится в состав циркалов как легирующий элемент до 0,14 и более процентов [1]. В работе [5] показано, что повышение содержания кислорода в оболочечных трубах из сплава Zr-1%Nb до 0,16%, вызывая интенсивное упрочнение, не приводит к значительной потере пластичности. Кроме того, с повышением температуры механических испытаний кислородное упрочнение ослабевает [1]. Присутствие кислорода до 0,5% при однородном его распределении не приводит к значительному снижению коррозионной стойкости в сплавах циркония с ниобием [6,7].

Таким образом, влияние кислорода на эксплуатационные свойства неоднозначно и требует дополнительных исследований в каждом конкретном случае.

В рамках Программы по созданию ядерно-топливного цикла в Украине Государственным трубным институтом разработана новая технология производства труб из циркониевого сплава

Zr-1%Nb, предусматривающая использование горячего прессования вместо традиционной высокотемпературнойковки для получения трекс-трубы под холодный передел. При этом наряду с литой трубной заготовкой электронно-лучевого переплава (ЭЛП) использовали новую заготовку, полученную гарнисажной плавкой с электромагнитным перемешиванием (ГЭМП) по технологии Физико-технического института металлов и сплавов НАНУ в условиях ГНПП «Цирконий», с содержанием кислорода 0,06...0,18%. Рост прочностных и некоторое снижение пластических характеристик сплава с повышением уровня содержания кислорода может негативно сказываться на технологической пластичности при производстве трубной продукции на стадии холодной деформации. Поэтому возникла необходимость оценки пластичности металла горячедеформированных труб из слитков с различным содержанием кислорода с целью уточнения параметров дальнейшей холодной прокатки.

Для оценки свойств материалов помимо других в настоящее время широко применяется метод акустической эмиссии (АЭ), который является чувствительным инструментом исследования структуры и свойств материалов [8,9]. В атомной энергетике метод АЭ применяется в основном для оценки качества готовых труб и контроля состояния изделий в процессе эксплуатации [10,11]. Однако тот факт, что данный метод дает возможность проследить структурные преобразования и накопление повреждений в металле непосредственно в процессе деформации, позволил авторам работы применить его для оценки технологической пластичности металла при производстве труб из циркониевых сплавов.

Целью работы является оценка влияния содержания кислорода на пластичность и повреждаемость структуры в процессе деформации металла горячепрессованных труб из сплава Zr-1%Nb из слитков ГЭМП-выплавки на основе исследования структуры и параметров акустической эмиссии.

МАТЕРИАЛ И МЕТОДИКА

Исследовали горячедеформированные трубы, изготовленные из слитков ГЭМП выплавки $\varnothing 135$ мм, с содержанием кислорода 0,06...0,18%. Прессование проводили на горизонтальном прессе с усилием 16 мН со скоростью 0,4 м/с. Коэффициент вытяжки

был общим для всех труб и составлял $\mu = 12,5$. Размеры горячедеформированных труб – $\varnothing 48 \times 8,5$ мм. Прессование осуществляли при температурах β -области с последующей закалкой в воду. Режимы прессования и механические свойства горячедеформированных труб, изготовленных из слитков с различным содержанием кислорода, приведены в таблице.

Режимы прессования и механические свойства горячедеформированных труб

Содержание кислорода, %	Режим прессования и охлаждения	$\sigma_{0,2}$, МПа	σ_b , МПа	δ_s , %	φ , %
0,06	Нагрев 1050°C, выдержка 5 мин., вода	420...450	475...510	21...24	64...68
0,08	Нагрев 1050°C, выдержка 5 мин., вода	420...500	460...540	20...23	64...66
0,11	Нагрев 1100°C, выдержка 10 мин., вода	570...575	605...620	21...22	63...64
0,18	Нагрев 1100°C, выдержка 10 мин., вода	600...605	640...650	19...21	62...63

Структуру слитков и горячепрессованных труб изучали качественными и количественными методами на оптическом микроскопе "Неофот 21", автоматическом анализаторе структуры "Эпиквант" и электронном просвечивающем микроскопе ЭМ-125 методом реплик с извлечением. При электронографическом анализе в качестве эталона для градуировки длины дифракционной камеры применяли напыленный в вакууме спектрально чистый алюминий, что позволило с высокой точностью получать данные о межплоскостных расстояниях неизвестного вещества.

Изучение акустоэмиссионных спектров труб из циркониевого сплава Zr1Nb проводили на компьютеризированном исследовательском комплексе. Акустоэмиссионные сигналы регистрировали в процессе нагружения сегментов длиной 200 мм, вырезанных

из обточенных и расточенных на размер $\varnothing 46 \times 6,5$ мм горячепрессованных труб. Нагружение образцов проводили путем одноосного растяжения при комнатной температуре со скоростью $1 \cdot 10^{-3} \text{ с}^{-1}$. В процессе растяжения образцов синхронно регистрировали усилие, перемещение, а также параметры АЭ: активность, скорость счета и суммарную амплитуду сигналов.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для слитков из сплава Zr-1%Nb ГЭМП-способа выплавки, также как и для слитков ЭЛП, характерна речная структура, состоящая из пластин α -циркония и расположенных между ними прослоек β -ниобия. На рис. 1,а приведена микроструктура слитка ГЭМП-выплавки. Для сравнения на рис.1,б приведена микроструктура слитка ЭЛП.

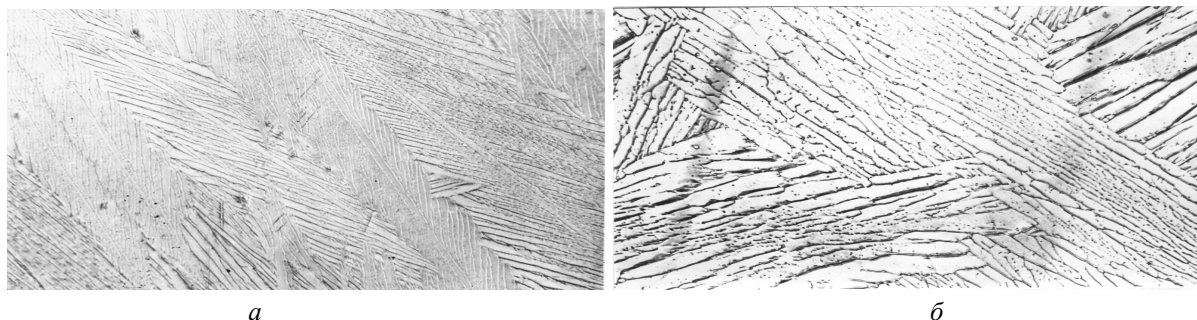


Рис. 1. Микроструктура слитка из сплава Zr-1%Nb, $\times 500$:
а – слиток ГЭМП выплавки; б – слиток выплавки ЭЛП

Существование между пластинами α -циркония прослоек β -ниобиевой фазы с ОЦК-решеткой подтверждается данными дифракции электронов. На рис. 2,а приведено электронномикроскопическое изображение отдельной пластинки – прослойки, извлеченной на экстракционную реплику, и её микродифракционная картина (см. рис. 2,б), расшифрованная согласно требованиям электронной дифракции [12] (см. рис. 2,в).

Благодаря меньшему диаметру слитка и более высокой скорости охлаждения, слиток, полученный ГЭМП-способом выплавки, отличается меньшим размером исходного β -зерна и меньшими межпластиночными расстояниями между слоями в квазимоноотектоидных колониях по сравнению со слитками ЭЛП (в среднем 3,5 мкм для слитков ГЭМП и 7,7 мкм для слитков ЭЛП, см. рис. 1). Уровень дисперсности структуры оказывает существенное влияние на ско-

рость фазовых превращений при нагреве под прессованием. Соответственно, скорость перекристаллизации слитков ГЭМП выше, чем слитков ЭЛП, что в промышленных условиях приводит к сокращению времени нагрева и уменьшению потерь металла, связанных с окислением поверхностных слоев.

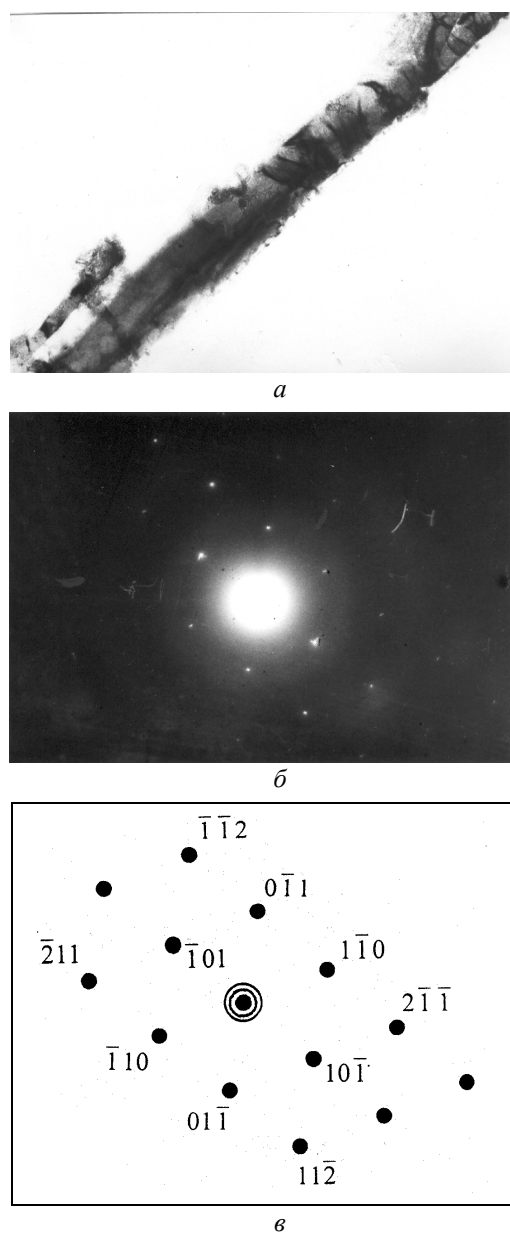


Рис. 2. Прослойки (рейки) ниобия, извлеченные на углеродную реплику, $\times 30000$:
 а – электронномикроскопическое изображение;
 б – микродифракционная картина;
 в – схема расшифровки микродифракционной картины, ось зоны $[111]$ циркония параллельна пучку электронов

Предварительные исследования [13] показали, что наиболее благоприятной для холодной деформации является структура мартенситного типа, полученная закалкой в воду горячедеформированной заготовки после прессования при температурах β -области. На рис. 3, а-г приведена микроструктура горячедеформированных труб, полученных с при-

менением данной схемы из слитков ГЭМП с различным содержанием кислорода.

Видно, что все трубы имеют структуру мартенситного типа. Однако наличие α -циркониевой оторочки вокруг бывших зерен β -фазы в горячепрессованных трубах с содержанием кислорода 0,11% и выше указывает на то, что с увеличением содержания кислорода распад β -фазы начинается при более высоких температурах.

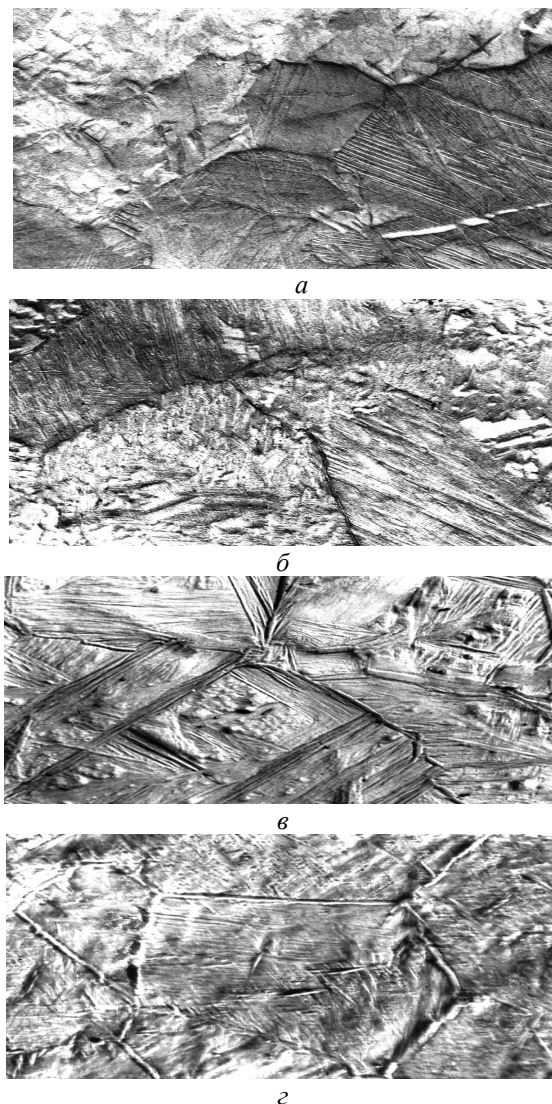


Рис. 3. Структура горячедеформированных труб различным содержанием кислорода $\times 500$:
 1 – 0,06% O₂; 2 – 0,08% O₂; 3 – 0,11% O₂;
 4 – 0,18% O₂

Кроме того, как видно из рис. 3, в трубах с различным содержанием кислорода мартенситная матрица имеет различную морфологию. С увеличением содержания кислорода дисперсность мартенситных кристаллитов повышается.

Металлографические исследования, проведенные на продольных шлифах, изготовленных из разрушенных образцов, позволили проследить структурные изменения, происходящие в процессе деформации, и связать их с параметрами АЭ. Микрострук-

тура образцов деформированных труб приведена на рис. 4,а-г.

Установлено, что для деформированных образцов с содержанием кислорода 0,06...0,08% характерно наличие большого количества двойников в зоне разрушения (рис. 4,а). Однако с увеличением содержания кислорода их количество по мере удаления от

места разрыва уменьшается (см. рис. 4,б). В образцах с содержанием кислорода 0,11% двойники встречаются редко даже вблизи зоны разрушения (см. рис. 4,в), а в деформированных образцах с 0,18% кислорода методом световой микроскопии двойники не обнаружены (см. рис. 4,г).

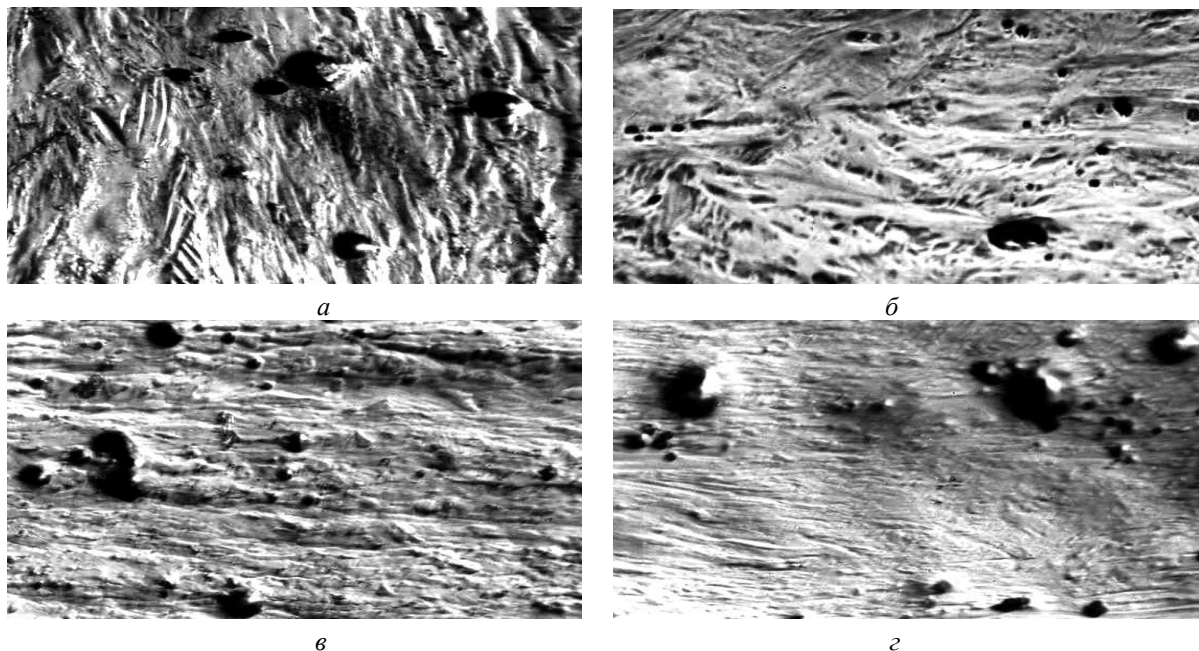


Рис. 4. Структура образцов горячедеформированных труб с различным содержанием кислорода в зоне разрушения, $\times 500$:

1 – 0,06% O_2 ; 2 – 0,08% O_2 ; 3 – 0,11% O_2 ; 4 – 0,18% O_2

По специально разработанной методике определено количество пор в металле образцов горячепрессованных труб по мере удаления от места разрушения. Зависимости, построенные на основании этих данных, приведены на рис. 5. Видно, что с ростом содержания кислорода поры в образцах обнаруживаются на большем расстоянии от места разрыва, т.е. зарождение необратимых повреждений структуры начинается на более ранних стадиях деформации.

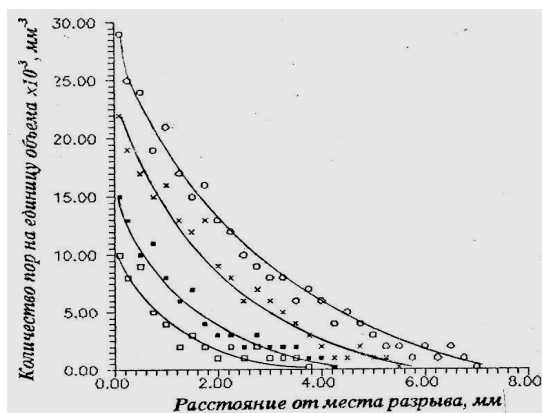
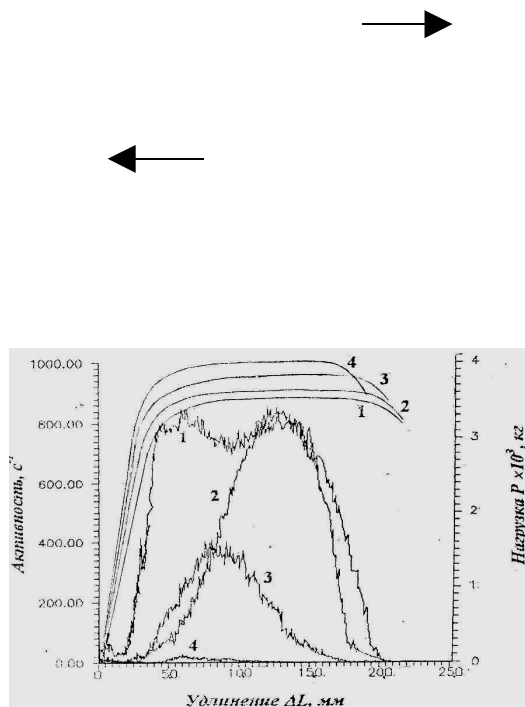


Рис. 5. Количество пор в единицу объема на различном удалении от места разрыва в образцах горячедеформированных труб с различным содержанием кислорода:

□ – 0,06%; ■ – 0,08%; × – 0,11%; о – 0,18%

На рис. 6 изображены кривые активности и скорости счета, а также деформационные кривые, записанные в процессе одноосного растяжения образцов горячепрессованных труб с различным содержанием кислорода.



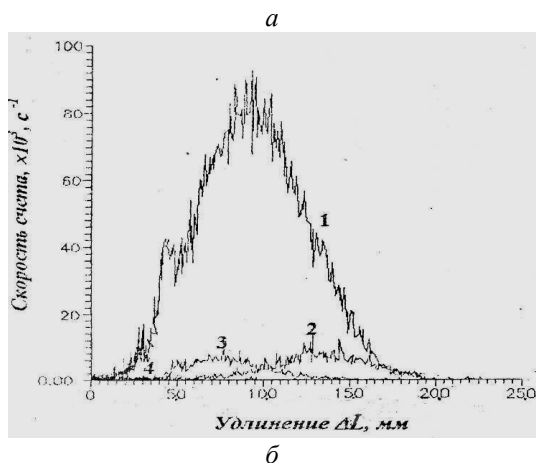


Рис. 6. Деформационные кривые и кривые активности (а) и скорости счета (б), записанные в процессе нагружения образцов горячепрессованных труб с содержанием кислорода: 1 – 0,06%; 2 – 0,08%; 3 – 0,11%; 4 – 0,18%

Повышение уровня содержания кислорода приводит к некоторому упрочнению мартенситной матрицы, однако мало сказывается на таких параметрах, как относительное удлинение и сужение образцов (см. табл. и рис. 6). В то же время параметры акустической эмиссии резко отличаются. Так, с уменьшением содержания кислорода наблюдается существенный рост активности сигналов. При этом происходит смещение максимума на АЭ-кривых в область развитой пластической деформации.

В то время как для образцов с содержанием кислорода 0,06...0,08% высокий уровень активности сохраняется вплоть до начала локализации деформации в шейке, для образцов с содержанием кислорода 0,11% и выше уровень сигналов заметно снижается уже на стадии равномерной пластической деформации. Подобная картина характерна и для кривых скорости счета и суммарной амплитуды сигналов.

Для образцов с содержанием кислорода 0,06 % характерно наличие двух максимумов на кривой активности. При этом максимум скорости счета совпадает с провалом на кривой активности. Кроме того, в отличие от других образцов, рост количества событий здесь начинается еще до предела текучести, а максимальный уровень регистрируется уже на ранних стадиях процесса пластической деформации.

Можно полагать, что на начальных стадиях деформации проходит по границам пакетов либо внутризерненным скольжением дислокаций и сопровождается потоком АЭ-импульсов небольшой энергии. Снижение содержания кислорода приводит к снижению уровня твердорастворного упрочнения. В металле со структурой мартенситного типа, изначально имеющей высокий запас внутренней энергии, это приводит к развитию процессов множественного скольжения дислокаций на более ранних стадиях деформации. Следствием этого является рост количества дислокаций в скоплениях и увеличение энергии излучаемых АЭ-сигналов. Так, для образцов с содержанием кислорода 0,06% рост активности еще на стадии упругой деформации указывает на то, что движе-

ние дислокаций становится возможным при усилиях ниже предела текучести (см. рис. 6,а).

Увеличение степени деформации приводит к упрочнению металла, а также снижению энергии и активности излучаемых сигналов. Когда с ростом степени деформации множественное скольжение дислокаций затрудняется, возникающие пиковые упругие напряжения могут релаксировать путем двойникования или в результате локального разрушения с образованием микропор. Двойникование, не приводя к значительной остаточной деформации металла, создает новые ориентировки, которые облегчают дальнейшее скольжение, тем самым, увеличивая пластическую деформацию, предшествующую разрушению. Этим объясняется появление второго максимума на кривой активности образцов с 0,06% кислорода. Появление максимума на кривой скорости счета одновременно с падением количества событий указывает на интенсификацию процессов двойникования и высокий уровень энергии излучаемых при этом сигналов.

Повышение содержания кислорода приводит к подавлению процессов двойникования и началу зарождения микропор уже на поздних стадиях равномерной пластической деформации, на что указывает падение уровня АЭ-сигналов в металле образцов с содержанием кислорода 0,11% и выше еще до начала локализации деформации.

Исследования показали, что изменение количества кислорода в сплаве Zr-1%Nb в меньшей мере влияет на уровень механических свойств, чем на параметры АЭ. Изучение особенностей процессов пластической деформации и накопления необратимых дефектов в металле с различным содержанием кислорода на основе анализа микроструктуры и АЭ-распределений позволяет прогнозировать его поведение в очаге деформации при холодной прокатке. При выборе схем изготовления труб на холодном переделе необходимо учитывать, что с ростом содержания кислорода изменения в динамике процессов деформации металла приводят к снижению уровня пластичности и росту вероятности образования дефектов структуры, неустраняемых последующей термической обработкой, при меньших степенях деформации.

С целью уточнения параметров холодной деформации горячепрессованных трубных заготовок с различным содержанием кислорода были прокатаны опытные образцы труб со степенью деформации $\epsilon = 60\%$. Исследования подтвердили удовлетворительный уровень механических свойств и отсутствие неустраняемых дефектов структуры в металле всех труб, включая трубы с 0,18% кислорода. АЭ исследования показали наличие достаточного запаса пластичности в металле холоднодеформированных труб с содержанием кислорода 0,06...0,08%. Данные, полученные при исследовании металла горячепрессованных и холоднодеформированных труб, позволяют сделать вывод о возможности корректировки маршрутов прокатки труб с содержанием кислорода до 0,08% в сторону увеличения степени деформации.

ВЫВОДЫ

1. Исследовали слитки ГЭМП-выплавки из сплава Zr-1%Nb с содержанием кислорода 0,06...0,18% и горячедеформированные трубные заготовки, полученные из них закалкой в воду после прессования при температурах β -области.
2. Показано, что содержание кислорода влияет на морфологию мартенситной матрицы горячедеформированных труб, а также на процессы образования и развития необратимых повреждений структуры (микропор) в процессе последующей деформации.
3. Изучена взаимосвязь параметров акустической эмиссии с эволюцией структуры и накоплением необратимых дефектов в процессе деформации образцов горячедеформированных труб.
4. Показано, что увеличение количества кислорода приводит к подавлению процессов двойникования и росту вероятности образования необратимых дефектов структуры при меньших степенях деформации.
5. Установлено, что метод АЭ более чувствителен к изменению содержания кислорода в металле горячедеформированных труб из сплава Zr-1%Nb, чем механические характеристики.
6. Исследования показали, что метод акустической эмиссии может успешно применяться для оценки пластичности и повреждаемости металла, а также для корректировки маршрутов прокатки при изготовлении труб из циркониевых сплавов.

ЛИТЕРАТУРА

1. А.С. Займовский, А.В. Никулина, Н.Г. Решетников. *Циркониевые сплавы в атомной энергетике*. М.: «Энергоиздат», 1981, 253 с.
2. I. Aitchison, P.H. Davies. Role of microsegregation in fracture of cold-worked Zr-2,5% Nb pressure tubes // *J. Nucl. Mater.* 1993, v. 203, № 3, p. 206–220.
3. А.В. Никулина, М.М. Перегуд, В.К. Шамардин, В.П. Кобылянский. Металлургические факторы, определяющие свойства сплавов циркония под облучением // *Труды Международной конференции по реакторному материаловедению, Алушта, 22-25 мая 1990*. Т. 4. Харьков, 1990, с. 40–54.
4. В.П. Кобылянский, В.К. Шамардин, З.Е. Островский, В.М. Раевский, А.В. Никулина, М.М.

Перегуд, В.М. Григорьев. Радиационное формоизменение оболочечных и канальных труб из сплавов циркония при высоких флюенсах нейтронов // Там же, с. 64–72.

5. В.А. Цикалов, Б.В. Самсонов, А.Я. Рогозянов, Н.П. Лосев, В.К. Шамардин, В.П. Кобылянский, А.В. Никулина, М.Б. Фивейский. Влияние реакторного облучения на механические свойства циркониевых сплавов // *Физика и химия обработки материалов*. 1982, № 6, с. 3–7.

6. Е.М. Тарараева, Л.С. Муравьева. Влияние кислорода и олова на механические свойства сплавов циркония с 1 и 2,5% Nb // *Строение и свойства сплавов для атомной энергетики* / Под ред. О.С. Иванова, Т.А. Бабаева. М.: «Наука», 1973, с. 158–172.

7. Р.Ф. Войтович. *Окисление циркония и его сплавов*. Киев: «Наукова думка», 1989.

8. З.А. Бибик, А.И. Потапов, В.М. Игнатов. Роль поверхности при пластической деформации металлов и сплавов и её связь с акустической эмиссией // *ТД и НК*. 1991, №1, с. 66–72.

9. А.А. Юдин, В.И. Иванов. Связь сигнала акустической эмиссии с пластической деформацией металла // *Проблемы прочности*. 1986, №6, с. 103–105.

10. П.И. Стоев. Исследование акустических спектров циркония в процессе деформации // *ВАНТ. Серия: ФРП и РМ*. 1997, в. 1(65), 2(66), с. 135–139.

11. А.В. Судаков, Е.Ю. Нефедьев. Использование метода акустической эмиссии для выявления развивающихся дефектов в элементах оборудования АЭС с целью продления сроков службы // *Материалы научно-технической конференции «Перспективы и проблемы развития атомной энергетики России и ряда государств бывшего СССР на пороге XXI века», Санкт-Петербург, 5-7 октября 1999*. С-Петербург, Изд. СПбГТУ. 1999, с. 324–328.

12. К. Эндрюс, Д. Дайсон, С. Киоун. *Электроннограммы и их интерпретация* / Пер. с англ. М.П. Усикова / Под ред. Л.Г. Орлова. М.: «Мир», 1971. 256 с.

13. 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. бюл. / Придніпровська державна академія будівництва та архітектури. Днепропетровск. 2002, №2-3, с. 11–18.

ВПЛИВ ВМІСТУ КИСНЮ НА ПЛАСТИЧНІСТЬ, ПОШКОДЖУВАНІСТЬ І ПАРАМЕТРИ АКУСТИЧНОЇ ЕМІСІЇ МЕТАЛУ ТРУБ ЗІ СПЛАВУ Zr-1%Nb

В.С. Вахрушева, О.А. Коленкова, Г.Д. Сухомлін

Досліджували структуру, механічні характеристики і акустоемісійні спектри, записані в процесі розтягування зразків горячедеформованих труб із сплаву Zr-1%Nb із вмістом кисню 0,06...0,18%. Знайдено явний взаємозв'язок між динамікою процесів деформації в металі з різним вмістом кисню і параметрами акустичної емісії, а також накопиченням незворотніх дефектів (пір). Показано, що метод АЕ більш чутливий до зміни вмісту кисню, ніж механічні характеристики. Дослідження показали,

що метод акустичної емісії може бути успішно застосований для оцінки технологічної пластичності і пошкодженості металу, а також для коригування маршрутів холодної прокатки при виготовленні труб з цирконієвих сплавів.

EFFECT OF OXYGEN CONTENT ON PLASTICITY, DAMAGE AND ACUSTIC EMISSION PARAMETERS OF Zr-1% Nb TUBES

V.S. Vakhrusheva, O.A. Kolenkova, G.D. Sukhomlin

A structure, mechanical descriptions and AE spectrums written down in the process of tension of standards of hot-deformed pipes of the Zr-1%Nb alloy with maintenance of oxygen 0,06-0,18%, was studied. Obvious intercommunication between the dynamics of deformation processes in a metal with a different maintenance of oxygen and parameters of acoustic emission and also accumulation of irreversible defects is found out. It is shown, that the AE method is more sensible to the change of oxygen maintenance than mechanical descriptions. Researches showed that the acoustic emission method can be successfully applied for estimation of technological plasticity and damage of the metal, and also for correction of routes of the cold pipes rolling of zirconium alloys.