

Высокотемпературная прочность циркониевого сплава КТЦ-110

В. В. Ковалев, В. Н. Киселевский, В. А. Борисенко, В. В. Бухановский

Институт проблем прочности им. Г. С. Писаренко НАН Украины, Киев, Украина

Описаны методы и результаты исследования характеристик прочности и пластичности опытной партии труб из циркониевого сплава КТЦ-110 при кратковременном и длительном статическом нагружении. Полученные данные сравниваются с аналогичными характеристиками сплава Э-110, широко применяемого в активных зонах ядерных реакторов типа ВВЭР-1000.

Ключевые слова: ядерные реакторы, циркониевый сплав, кратковременная прочность, пластичность, тангенциальное направление, продольное направление, ползучесть, скорость ползучести.

Введение. В соответствии с концепцией развития отечественной энергетики и решением о создании в Украине национального ядерного топливного цикла выполнен ряд работ по разработке технологии изготовления труб-оболочек тепловыделяющих элементов (ТВЭЛ) исходя из собственной производственно-сырьевой базы и научно-технического потенциала страны. В рамках проводимых мероприятий разработан сплав КТЦ-110 и организовано опытно-промышленное производство циркониевого проката на трубных заводах Украины [1].

Сплав КТЦ-110 является аналогом сплава Э-110 российского производства, широко применяемого в настоящее время в активных зонах ядерных реакторов типа ВВЭР-1000. Однако технологии получения материала и изготовления из него труб-оболочек ТВЭЛ существенно отличаются от принятых в мировой практике [1, 2].

Целью работы является исследование механических характеристик сплава КТЦ-110 при кратковременном статическом растяжении в диапазоне температур 290...690 К, а также характеристик ползучести и длительной прочности в обычных и коррозионных условиях при тех же температурах.

Методика проведения исследований. В качестве объекта исследования выбраны трубы-оболочки ТВЭЛ диаметром 9,15 × 7,72 мм из циркониевого сплава КТЦ-110 (Zr + 1% Nb) двух опытно-промышленных партий, полученные на разных заводах-производителях. Исходной заготовкой для проката служили слитки циркония, полученного методом кальциетермического восстановления из тетрафторида циркония с последующим рафинировочным электронно-лучевым переплавом [1]. Передельные трубы получали непосредственно из слитков методом горячего прессования с большими деформациями. Замена такого общепринятого металлургического передела, какковка горячим прессованием, является главной отличительной особенностью разработанной Государственным трубным институтом (г. Днепропетровск) технологии производства циркониевых труб. Далее в технологической схеме предусмотрена холодная прокатка с промежуточными термическими обработками в вакууме после каждого прохода и специальной

химической обработкой на промежуточных размерах. Химический состав сплава КТЦ-110 следующий, % [1]: 1,0 Nb; 0,11...0,14 O₂; 0,001...0,0012 H₂; 0,0054...0,0060 N₂; 0,0011...0,0021 C.

Структура материала циркониевых труб – рекристаллизованная мелкозернистая со средним размером зерна 3–5 мкм и высокой концентрацией выделений частиц второй фазы размером до 5 мкм, имеющих незначительную тенденцию к объединению (рис. 1).

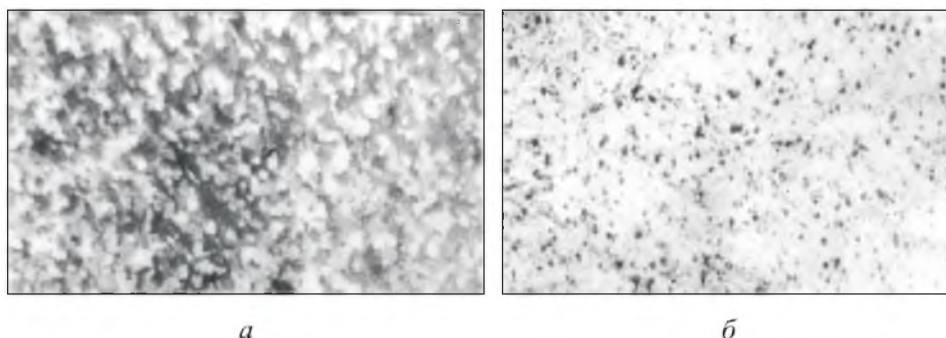


Рис. 1. Микроструктура материала труб из сплава КТЦ-110 – *а* и распределение выделений частиц второй фазы – *б*. ($\times 500$)

Характеристики кратковременной прочности материала циркониевых труб определялись в продольном и тангенциальном направлениях соответственно на сегментных и кольцевых образцах, вырезанных их труб-оболочек в состоянии поставки. Испытания образцов проводились на установке 1246-Р [3] при комнатной температуре на воздухе и при $T = 620, 650$ и 690 К в вакууме не хуже $0,1$ Па согласно методикам, описанным в [4, 5]. При каждой температуре испытывались от пяти до восьми одноштишных образцов каждой партии. Скорость деформирования при растяжении составляла 1 мм/мин, что соответствовало для сегментных образцов относительной скорости деформации $\sim 1,1 \cdot 10^{-3} \text{ с}^{-1}$.

Методика [5] предусматривает определение прочностных характеристик исследуемых труб в тангенциальном направлении по результатам испытания кольцевых образцов $\varnothing 9,15 \times 7,72$ мм и высотой $2,7$ мм на растяжение двумя жесткими полудисковыми опорами. При этом расчетная длина l_0 кольцевого образца определялась по формуле

$$l_0 = \frac{\pi d}{8}, \quad (1)$$

где d – внутренний диаметр трубы, $d = 7,72$ мм.

Зависимость (1) получена для пластичных материалов на основании данных теоретических и экспериментальных исследований, включающих: решение в упругой постановке задачи о растяжении анизотропного кольца двумя жесткими полудисковыми опорами; исследование закономерностей распределения пластических деформаций по окружности кольцевого образца и определение расчетно-экспериментальным путем зависимости между

линейным перемещением активного захвата испытательной машины и окружающей деформацией кольцевого образца. Диаметр опоры $D_3 = 7,7$ мм выбирался исходя из условия сопряжения внутренней поверхности кольца с наружной поверхностью опорного полудиска по скользящей посадке [5, 6].

Следует отметить, что используемые в настоящей работе значения $l_0 = 3,03$ мм и $D_3 = 7,7$ мм несколько отличались от таковых, принятых в российской методике определения механических характеристик кольцевых образцов от труб из сплава Э-110 при растяжении ($l_0 = 6$ мм и $D_3 = 6$ мм) [7].

По результатам кратковременных механических испытаний определялись предел прочности σ_B , условный предел текучести $\sigma_{0,2}$ и относительное удлинение δ материала труб в продольном и тангенциальном направлениях. В связи с рассеянием механических характеристик проводилась статистическая обработка результатов. При этом вычислялись среднее выборочное значение \bar{x} , выборочное среднеквадратичное отклонение S_x (СКВО), доверительные интервалы для математического ожидания при уровне значимости $\alpha = 0,05$. Нижний гарантированный предел x_H прочностных и пластических характеристик определялся как нижний толерантный предел, найденный для уровня доверительной вероятности $\gamma = 0,99$ и вероятности $\rho = 1 - \alpha = 0,95$ [8].

Характеристики длительной прочности и ползучести сплава КТЦ-110 исследовались на кольцевых образцах опытной партии труб в тангенциальном направлении в обычных условиях и в коррозионной среде (йод) при температурах 620, 650 и 690 К по методике, описанной ранее [9]. Разработанная для этих целей экспериментальная установка позволяет проводить испытания образцов труб под внутренним давлением инертного газа и коррозионной среды от $20 \cdot 10^5$ до $30 \cdot 10^6$ Па. Для образования постоянного давления во внутренней полости образца используется очищенный инертный газ (аргон) с содержанием кислорода $10^{-5} \dots 10^{-6}$ %. Перед размещением в установке образцы проверяли на герметичность внутренним давлением $(3 \dots 5) \cdot 10^6$ Па инертного газа при комнатной температуре. Во внутреннюю полость образца, заполненную аргоном, помещалась навеска коррозионного агента (кристаллический йод) из расчета, чтобы его поверхностная концентрация была равна или на 10% превышала критическое значение для сплавов циркония при данной температуре. Для обеспечения необходимого парциального давления коррозионной среды на все время испытаний устанавливался обратный клапан.

Одновременно с нагружением проводилась регистрация удлинения образца в продольном (Δl) и поперечном (ΔD) направлениях. Деформацию образца регистрировали таким образом, чтобы полностью установить характер ее изменения в зависимости от времени. Перерыв при испытаниях на коррозионное растрескивание под напряжением не допускался.

Для измерения линейных (продольных и тангенциальных) деформаций образца при испытаниях использовались оптические катетометры бесконтактного измерения в диапазоне 0...200 мм с абсолютной погрешностью измерения $\pm 0,010$ мм при расстоянии до образца 340–380 мм.

Результаты исследований. Механические характеристики сплава КТЦ-110, которые получены при кратковременном растяжении кольцевых и сегментных образцов, вырезанных из труб, в тангенциальном и продольном направлениях приведены в табл. 1, 2 и на рис. 2, 3.

Т а б л и ц а 1

Характеристики кратковременной прочности и пластичности образцов труб из сплава КТЦ-110 в тангенциальном направлении

T, К	Статистический параметр			Границы доверительного интервала для математического ожидания		Выборочное СКВО
	минимальный	максимальный	средне-выборочный	нижняя	верхняя	
$\sigma_{в}$, МПа						
290	541	570	559,4	546,07	572,7	13,33
	591	630	610,5	596,50	624,6	13,86
620	239	244	241,4	239,20	243,6	2,19
	227	250	240,8	223,30	258,3	17,53
650	214	220	217,0	202,20	231,8	14,81
	204	217	211,6	206,40	216,8	5,18
690	205	209	206,8	205,10	208,6	1,75
	205	209	206,6	205,30	207,8	1,23
$\sigma_{0,2}$, МПа						
290	476	495	485,3	477,9	492,7	7,41
	493	539	506,2	499,2	513,2	6,93
620	195	199	196,8	194,2	199,4	2,63
	187	195	190,8	187,2	194,3	3,51
650	155	180	170,7	155,9	185,5	14,82
	170	189	176,1	166,5	185,7	9,63
690	161	174	169,8	164,5	175,1	5,26
	161	166	163,2	160,6	165,8	2,63
δ , %						
290	43,7	49,5	46,1	43,9	48,3	2,22
	41,3	47,9	44,7	43,4	46,0	1,25
620	64,4	67,7	65,4	63,6	67,2	1,75
	64,4	71,0	67,4	65,6	69,2	1,75
650	64,4	66,0	64,9	63,4	66,4	1,48
	62,7	66,0	64,4	63,2	65,6	1,18
690	59,4	64,4	62,7	60,5	64,9	2,19
	66,0	69,3	67,3	65,7	68,9	1,58

Примечание. Здесь и в табл. 2 над чертой приведены данные для образцов труб партии № 1, под чертой – партии № 2.

Т а б л и ц а 2

**Характеристики кратковременной прочности и пластичности образцов труб
из сплава КТЦ-110 в продольном направлении**

T, К	Статистический параметр			Границы доверительного интервала для математического ожидания		Выборочное СКВО
	мини-мальный	макси-мальный	средне-выборочный	нижняя	верхняя	
$\sigma_{в}$, МПа						
290	<u>523</u>	<u>579</u>	<u>555,2</u>	<u>534,2</u>	<u>576,3</u>	<u>21,04</u>
	500	549	523,8	502,0	545,7	21,91
620	<u>249</u>	<u>259</u>	<u>255,6</u>	<u>246,8</u>	<u>264,4</u>	<u>8,76</u>
	232	242	238,0	235,3	240,6	2,63
650	<u>207</u>	<u>237</u>	<u>223,0</u>	<u>213,4</u>	<u>232,6</u>	<u>9,60</u>
	200	214	205,5	197,6	213,4	7,89
690	<u>204</u>	<u>214</u>	<u>210,0</u>	<u>201,2</u>	<u>218,8</u>	<u>8,76</u>
	195	205	200,6	191,8	209,4	8,76
$\sigma_{0,2}$, МПа						
290	<u>376</u>	<u>457</u>	<u>407,8</u>	<u>364,0</u>	<u>451,6</u>	<u>43,82</u>
	361	396	371,8	350,8	392,8	21,04
620	<u>135</u>	<u>181</u>	<u>164,6</u>	<u>138,3</u>	<u>190,9</u>	<u>26,30</u>
	115	134	125,6	111,3	127,1	7,88
650	<u>115</u>	<u>128</u>	<u>121,0</u>	<u>112,2</u>	<u>129,8</u>	<u>8,80</u>
	95	103	99,7	95,3	104,1	4,38
690	<u>128</u>	<u>142</u>	<u>134,0</u>	<u>125,2</u>	<u>142,8</u>	<u>8,77</u>
	96	108	103,0	96,8	109,1	6,14
δ , %						
290	<u>21,0</u>	<u>24,3</u>	<u>22,6</u>	<u>20,8</u>	<u>24,4</u>	<u>1,75</u>
	20,5	25,5	22,8	20,6	25,0	2,19
620	<u>33,0</u>	<u>41,8</u>	<u>37,3</u>	<u>34,6</u>	<u>39,9</u>	<u>2,63</u>
	34,8	41,5	38,1	35,4	40,7	2,63
650	<u>31,0</u>	<u>40,8</u>	<u>36,4</u>	<u>31,6</u>	<u>41,2</u>	<u>4,80</u>
	32,8	38,3	36,2	32,7	39,7	3,51
690	<u>33,5</u>	<u>41,8</u>	<u>38,5</u>	<u>35,0</u>	<u>42,0</u>	<u>3,51</u>
	37,5	45,5	42,6	36,0	45,2	2,62

Видно, что характеристики прочности и пластичности материала труб исследованных партий несколько отличаются. Как правило, это отличие не превышает 2...8%. Однако значения условного предела текучести сплава в продольном направлении для труб партии № 1 на 10...30% выше, чем для труб партии № 2, во всем исследованном диапазоне температур.

Для труб-оболочек твэл из сплава КТЦ-110 характерна анизотропия механических свойств. Прочность и пластичность материала труб в танген-

циальном направлении, как правило, выше, чем в продольном. Наибольшее различие имеет место для условного предела текучести и составляет 35...70%.

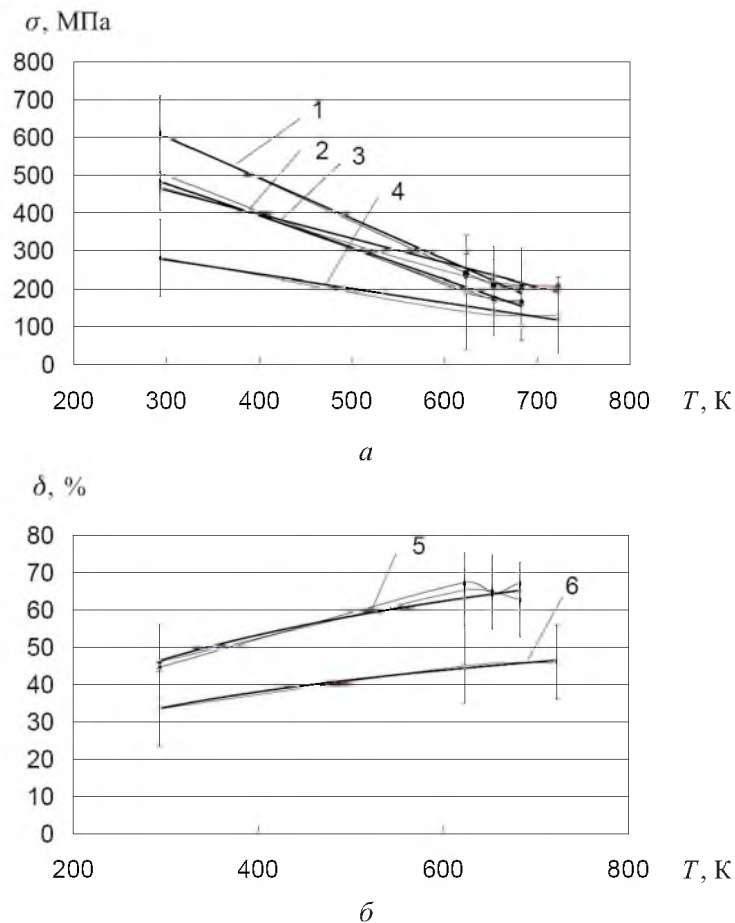


Рис. 2. Температурная зависимость характеристик прочности (а) и пластичности (б) сплавов КТЦ-110 (1, 2, 5) и Э-110 (3, 4, 6) в тангенциальном направлении. (Здесь и на рис. 3: 1, 3 – σ_B ; 2, 4 – $\sigma_{0.2}$; 5, 6 – δ .)

Прочностные характеристики сплава КТЦ-110 в тангенциальном и продольном направлениях при 290 К на 30...60% выше, чем сплава Э-110 [2, 10]. С повышением температуры до 620...690 К значения предела прочности и условного предела текучести указанных сплавов приблизительно равны (рис. 2,а, 3,а). Пластические свойства сплава КТЦ-110 в тангенциальном направлении на 40...50% выше, чем сплава Э-110, как при комнатной, так и при повышенных температурах. Однако в продольном направлении наблюдается обратная картина: относительное удлинение сплава КТЦ-110 на 20...40% ниже, чем сплава Э-110, во всем исследованном диапазоне температур (рис. 2,б, 3,б).

Даже для широко применяемого в атомной энергетике сплава Э-110 известны немногочисленные экспериментальные данные по длительной прочности и пластичности в обычных условиях (без коррозионной среды), в

коррозионной среде они практически отсутствуют. Имеются только некоторые результаты исследования характеристик жаропрочности сплавов Э-110 и Э-635, полученные на образцах труб в продольном направлении при напряжениях $(0,7...0,9)\sigma_v$ на машинах типа АИМА-5-2 [2, 10]. Большая часть таких испытаний еще продолжается, в основном в России.

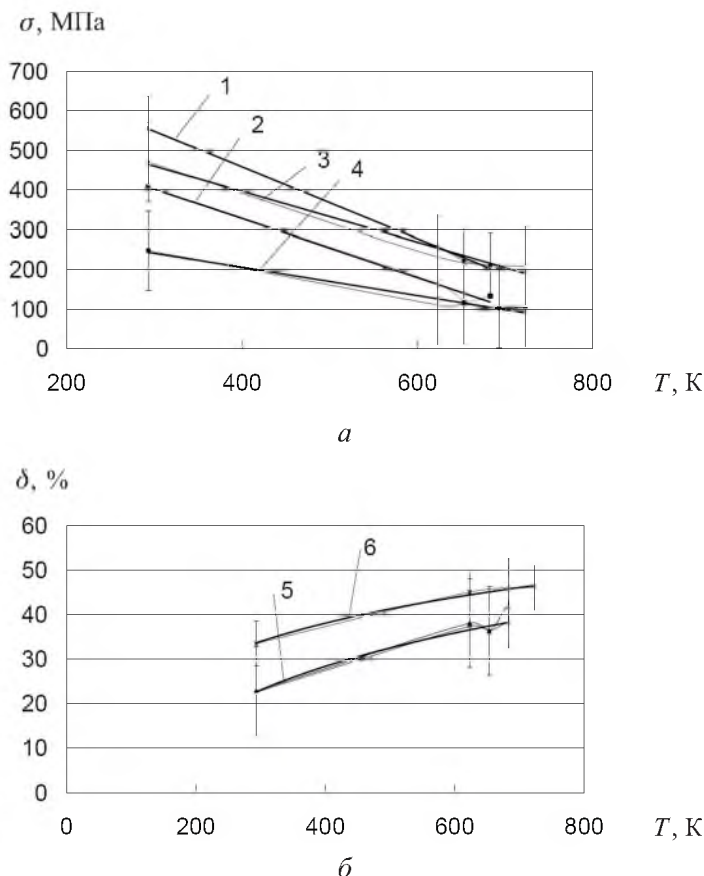
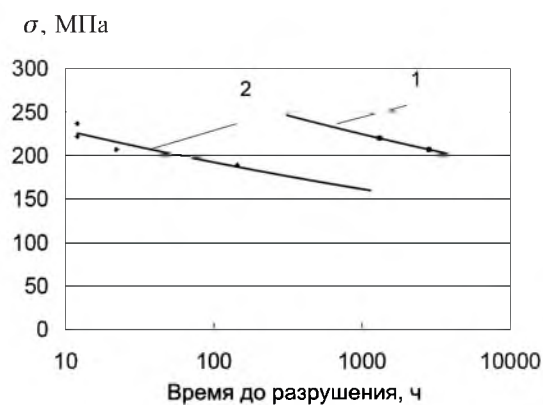


Рис. 3. Температурная зависимость характеристик прочности (а) и пластичности (б) сплава КТЦ-110 в продольном направлении.

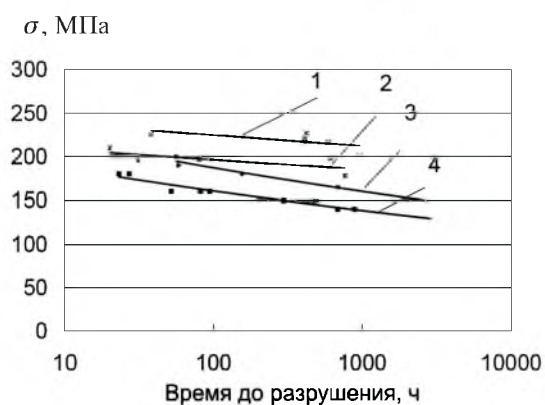
Длительная прочность и пластичность исследовались на образцах труб из сплава КТЦ-110 при температурах 620...690 К (рис. 4). Для сравнения на рис. 4 приведены результаты испытаний образцов труб сплава Э-110.

Как видно, длительная прочность образцов труб из сплава КТЦ-110 в обычных условиях в исследуемом температурном интервале на порядок выше, чем из сплава Э-110. Снижение времени до разрушения в коррозионной среде в сравнении с обычными условиями испытаний при тех же уровнях напряжения характерно для обоих рассматриваемых сплавов. Причем уменьшение долговечности в агрессивной среде во многом зависит от текстуры сплава, степени его анизотропии, состояния поверхности, температуры и т.д. [10–14]. Сопротивление коррозионному растрескиванию под напряжением образцов труб из сплава КТЦ-110 более высокое, чем из сплава Э-110, что, по-видимому, связано с различием текстуры и подтверж-

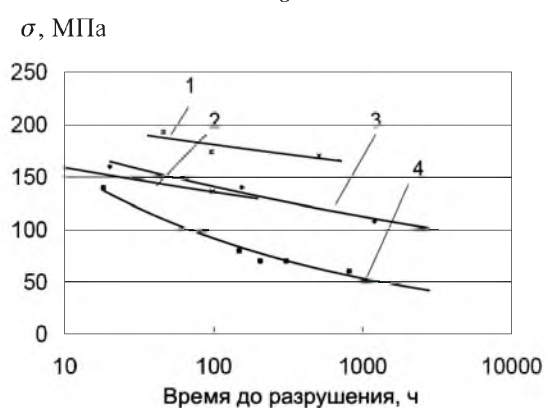
дается испытаниями при кратковременном нагружении. Ранее [11] показано, что даже небольшие изменения текстуры в радиальном направлении могут существенно увеличивать долговечность циркониевых сплавов и чувствительность труб к коррозионному растрескиванию под напряжением.



a



б



в

Рис. 4. Зависимость времени до разрушения от напряжения для сплавов КТЦ-110 (1, 2) и Э-110 (3, 4) в обычных условиях (1, 3) и в коррозионной среде (2, 4) при различных температурах: *a* – $T = 620$ К; *б* – $T = 650$ К; *в* – $T = 690$ К.

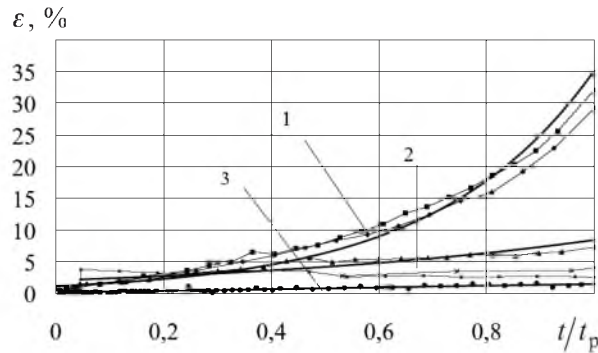


Рис. 5. Обобщенные диаграммы ползучести образцов труб из сплавов КТЦ-110 (1, 3) и Э-110 (2, 3) при $T = 650$ К в обычных условиях (1, 2) и в коррозионной среде (3): ■ – $\sigma = 220$ МПа; ◆ – $\sigma = 215$ МПа; * – $\sigma = 207$ МПа; × – $\sigma = 197$ МПа; ▲ – $\sigma = 195$ МПа; ● – $\sigma = 178$ МПа.

На рис. 5 приведены обобщенные диаграммы ползучести образцов труб из сплавов КТЦ-110 и Э-110 при $T = 650$ К. Видно, что для кривых характерны все три стадии ползучести. Однако для сплава КТЦ-110 третья стадия ползучести составляет от 30 до 45% общего ресурса пластичности, в то время как для сплава Э-110 эти значения в два раза меньше в обычных условиях нагружения. В коррозионной среде значительно увеличивается участок с постоянной скоростью ползучести, третья стадия ползучести для рассматриваемых сплавов практически отсутствует (на рис. 5 кривая 3). Основным механизмом разрушения в коррозионной среде, по-видимому, для обоих сплавов один и тот же – зернограничное растрескивание [14].

Заключение. Исследования прочностных свойств опытной партии труб из циркониевого сплава КТЦ-110 и широко применяемого в атомной энергетике сплава Э-110 при кратковременном нагружении показали, что полученные результаты сопоставимы. Пластические же свойства сплава КТЦ-110 в тангенциальном направлении заметно выше, чем сплава Э-110, в продольном направлении наблюдается обратная картина во всем рассматриваемом температурном интервале.

Установлено, что длительная прочность сплава КТЦ-110 в обычных условиях и в коррозионной среде в диапазоне температур 620...690 К на порядок выше, чем сплава Э-110. Характер кривых ползучести исследуемых циркониевых сплавов в коррозионной среде подобен: скорость ползучести на установившейся стадии существенно уменьшается, а участок ускоренной ползучести практически отсутствует.

Резюме

Описано методи та результати дослідження характеристик міцності і пластичності дослідної партії труб із цирконієвого сплаву КТЦ-110 при короткочасовому і тривалому статичному навантаженні. Отримані результати порівнюються з аналогічними характеристиками сплаву Е-110, що широко використовується в активних зонах ядерних реакторів ВВЕР-1000.

1. Вахрушева В. С. Состояние разработки технологии и организации производства труб-оболочек твэл из сплава циркония КТЦ-110 в Украине // Вопр. атом. науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. – 1999. – Вып. 1 (73), 2 (74). – С. 95 – 100.
2. Займовский А. С., Никулина А. В., Решетников И. Г. Циркониевые сплавы в атомной энергетике. – М.: Энергоатомиздат, 1981. – 232 с.
3. Испытательная техника. Справочник: В 2 т. / Под ред. В. В. Клюева. – М.: Машиностроение, 1982. – Т. 2. – 570 с.
4. Харченко В. К. О высокотемпературной прочности тугоплавких материалов // Пробл. прочности. – 1980. – № 10. – С. 94 – 103.
5. ДСТУ 2528-94. Метод испытаний на растяжение кольцевых образцов в условиях нагрева. – Введ. 01.07.95.
6. Неклюдов И. М., Ожигов Л. С., Савченко В. И. и др. Особенности определения характеристик пластичности кольцевых образцов из циркониевых сплавов в поперечном направлении // Пробл. прочности. – 2001. – № 2. – С. 137 – 141.
7. ОИ 001.325-91. Методика выполнения испытаний для определения характеристик механических свойств кольцевых образцов от труб по ТУ 95.405-89 при растяжении. – Введ. 19.09.91.
8. Степнов М. Н. Статистическая обработка результатов механических испытаний. – М.: Машиностроение, 1972. – 232 с.
9. Киселевский В. Н., Ковалев В. В., Россихин Г. С. Кинетика разрушения оболочек твэлов из циркониевого сплава в йодной среде // Пробл. прочности. – 1994. – № 3. – С. 30 – 39.
10. Кобылянский Г. П., Новоселов А. Е. Радиационная стойкость циркония и сплавов на его основе. – Димитровград, 1996. – 175 с.
11. Киселевский В. Н. Прочность конструкционных материалов ядерных реакторов. – Киев: Наук. думка, 1990. – 168 с.
12. Hofman P. and Spino J. Chemical aspects of iodine-induced stress corrosion cracking failure of zircaloy-4 tubing above 500° // J. Nucl. Mater. – 1983. – **114**. – P. 50 – 65.
13. Knorr B. B., Pelloux R. M., and Vanswam L. P. P. Effects of material condition on the iodine sec susceptibility of zircaloy-2 cladding // Ibid. – 1982. – **110**. – P. 230 – 245.
14. Киселевский В. Н., Ковалев В. В., Степаненко В. А. и др. Сопротивление циркониевого сплава коррозионному растрескиванию под напряжением // Пробл. прочности. – 1998. – № 2. – С. 122 – 130.

Поступила 25. 06. 2002