

ИЗУЧЕНИЕ ВЛИЯНИЯ СВЧ-ТЕРМООБРАБОТКИ НА ТЕКСТУРУ И СУБСТРУКТУРУ СПЛАВА Zr+2,5%Nb

Д.Г. Малыхин*, В.В. Корнеева**, В.М. Грицина**, Т.П. Черняева**, Е.А. Михайлов**

*Институт физики твердого тела, материаловедения и технологий ННЦ ХФТИ,

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

Харьков, Украина; E-mail: malykhin@kipt.kharkov.ua; тел. +38(057)335-64-75

Проведены рентгеновские исследования текстуры и определены характеристики микроструктуры (уровень микроискажений и размеры областей когерентного рассеяния (ОКР)) материала канальной трубы в исходном состоянии (в состоянии поставки) и после СВЧ-термообработки при температурах 980 и 1030 °С. Применён модифицированный метод аппроксимаций профилей дифракционных линий и хода графиков Вильямсона-Холла. Установлено, что СВЧ-термообработка канальной трубы с нагревом до указанных температур разрушает её кристаллографическую текстуру и способствует формированию развитой изотропной микроструктуры. Показано, что форма ОКР чувствительна к условиям закалки. Определена плотность дислокаций исследованных материалов по Вильямсону-Смоллмену.

Одним из направлений в развитии технологии усовершенствования текстуры и структурно-фазового состояния циркониевых изделий реакторного назначения является использование двойной фазовой перекристаллизации. В данной работе проведены рентгеноструктурные исследования влияния высокочастотной бета-термообработки (СВЧ-обработки) на текстуру и микроструктуру полнотражной канальной трубы из сплава Zr+2,5%Nb.

1. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ОБРАБОТКИ

Работа выполнена на канальной трубе диаметром 88 мм и толщиной стенки 4...4,5 мм из сплава Э125 в состоянии поставки (финальный отжиг 540 °С в течение 5 ч). Данное состояние канальной трубы выбрано за исходное.

СВЧ-обработка трубы осуществлялась на установке «Вертикаль». Поступательным перемещением со скоростью 4,95 мм/с труба подавалась в индукционное устройство установки, где током высокой частоты разогревалась со скоростью ~150 °С/с до заданной температуры в области бета-состояния. Далее труба поступала в охладитель, где струёй воды охлаждалась со скоростью 400...1200 °С/с. В процессе обработки температура трубы контролировалась системами пирометрического контроля.

Образцы для исследований были вырезаны с участков, нагретых в процессе СВЧ-обработки до температур 980 и 1030 °С, и собраны в виде кубиков размером ~12 мм с гранями, представляющими продольное сечение (TD - тангенциальное направление), поперечное сечение (LD - продольное направление) и тангенциально-аксиальное сечение трубы (RD - радиальное направление).

2. МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Исследована текстура и микроструктура образцов, вырезанных из канальной трубы в исходном состоянии и после СВЧ-обработки с нагревом до 980 и 1030 °С. Исследования проведены на рентгеновском дифрактометре ДРОН4-07 в излучении CuK_α со съёмкой полнопрофильных дифрактограмм по схеме Брэгга-Брентано.

Текстура исследовалась методом обратных полюсных фигур (ОПФ) [1-3]. При расчёте использовались значения интегральных интенсивностей I_i отражения, полученные при анализе полнопрофильных дифрактограмм с образцов. Текстура представлялась набором значений плотности полюсов $P(hkl)$ (упрощённо P_i), рассчитанных с использованием значений интегральных интенсивностей по следующей формуле:

$$P_i = (I_i / I_{0i}) / \sum_i A_i (I_i / I_{0i}), \quad (1)$$

где I_i - значения интегральных интенсивностей отражения от исследуемого образца; I_{0i} - эталонные значения интенсивностей отражения; I_i - интенсивности отражения от эталона, представляющего собой изотропный образец; A_i - статистический вес i -го отражения из всего стандартного множества отражений, введен П. Моррисом [2] для учета неравномерного распределения нормалей (hkl) -плоскостей на сфере проекций.

По текстурным данным для съёмки в трёх проекциях определены параметры Кернса [4]:

$$f = \sum_i A_i P_i \cos^2 \alpha_i, \quad (2)$$

где α_i - угол между соответствующей плоскостью $(hk.l)$ и (00.2) .

Параметры микроструктуры (уровень микроискажений и размер областей когерентного рассеяния (ОКР)) определены по полнопрофильным дифрактограммам от исследуемых образцов методом аппроксимаций [5,6]. Первичная обработка сводилась к выделению α_1 -синглетной составляющей полнопрофильных дифрактограмм и моделированию профиля синглета каждой линии функцией Фойгта:

$$V(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} i_C(y) \cdot i_G(x-y) dy; \quad (3.1)$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} i_{C,G}(x) dx = 1, \quad (3.2)$$

где составляющими функции Фойгта $V - i_{C,G}$ - являются соответственно функция Коши и функция

Гаусса. В качестве рабочего параметра представления функции Фойгта и её составляющих использована их полуширина (ширина на полувысоте, *half-width*). Предварительно получено точное соотношение между полушириной W функции Фойгта и полушириной её компонент – функции Коши (w_C) и функции Гаусса (w_G):

$$W = 0.535w_C + \sqrt{(0.465w_C)^2 + w_G^2}. \quad (4)$$

На основе этой формулы разработан алгоритм аппроксимации профиля α_1 -синглетов рентгеновских линий функцией Фойгта с оптимизацией параметров w_C и w_G [7].

По полученным данным строились графики Вильямсона-Холла $W\cos\theta$ от $\sin\theta$ [8]. Формула (3) использовалась для аппроксимации хода графиков для характерных (*hkl*)-серий линий.

Из значений W предварительно исключалась ошибка, связанная с рентгенооптическими условиями съёмки. С этой целью процедура аппроксимации профилей предварительно проведена по результатам эталонной съёмки образца чистого циркония в рекристаллизованном состоянии. Поскольку в таком случае обычно считается $w_C \approx 0$, параметры эталонной съёмки определялись путём построения графика $W_0^2(\tan^2\theta_i)$ и аппроксимации его хода следующей зависимостью:

$$W_0^2 = b^2 + ktg^2\theta. \quad (5)$$

Величина b^2 исключалась из исходных значений W по следующей формуле:

$$W^2 = W_{ucx}^2 - b^2. \quad (6)$$

По микроструктурным параметрам определена плотность дислокаций по Вильямсону-Смоллмену [9]. В соответствии с этим подходом значение плотности дислокаций ρ определялось как среднее геометрическое значений, рассчитанных по размерам ОКР D (ρ_D) и по среднеквадратичному значению уровня микроискажений $\langle \varepsilon^2 \rangle$ (ρ_s):

$$\rho = \sqrt{\rho_D \rho_s} = K \sqrt{3\langle \varepsilon^2 \rangle} / bD, \quad (7)$$

$$K = k / \ln(D / 2r_0), \quad (8)$$

где b – вектор Бюргерса; r_0 – радиус ядра дислокации, а k принято равным 26,1 и 52,1 для базисного и соответственно призматических плоскостей дифракции от ГПУ-решётки [10].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты текстурных исследований приведены в виде ОПФ на рис. 1.

Согласно полученным результатам канальная труба в исходном состоянии имеет сильно выраженную текстуру с плотностью полюсов (10.0) более 10 в продольном направлении (LD) и 6 (00.2) в тангенциальном направлении (TD) (текстура типа А [11]).

СВЧ-обработка с нагревом до температур 980 и 1030 °С существенно разрушает исходную текстуру. Наибольшие изменения происходят в продольном направлении (LD): часть поликристаллического ансамбля переориентируется в (LD) плоскостью (11.4)

с плотностью полюсов порядка 2. Остальная составляющая имеет признаки текстуры отжига [11]. В радиальном направлении (RD) реализуется практически изотропное состояние. Хотя и имеется некоторая связь с исходной текстурой, следует, однако, отметить, что текстуру в направлении RD СВЧ-обработка разрушает наиболее эффективно.

В табл. 1 приведены значения параметров Кернса для канальной трубы в исходном и СВЧ-обработанном состояниях.

Таблица 1

Параметры Кернса f в трёх направлениях трубы в исходном состоянии и после СВЧ-обработки

Состояние канальной трубы	Параметры Кернса в направлении		
	LD	TD	RD
Исходное	0,02	0,52	0,46
СВЧ-обаб. (980 °С)	0,32	0,33	0,33
СВЧ-обаб. (1030 °С)	0,31	0,33	0,30

Как видно из данных табл. 1, параметры Кернса СВЧ-обработанной трубы во всех трёх направлениях близки к значению 0,333, соответствующему изотропному состоянию материала.

Графическое представление первичных микроструктурных параметров СВЧ-обработанного материала представлено на примере графиков Вильямсона-Холла для направления TD трубы, СВЧ-обработанной с нагревом до 980 °С (рис. 2).

В графическом представлении выделены данные для серий (00.L) и (hk.0), в каждую из которых включены окрестности кристаллографических ориентаций в пределах 30°. Как видно из этих данных, наклон линий на графиках выделенных серий и остальных плоскостей (hk.L) почти одинаков, из чего следует примерное равенство для них уровня микроискажений.

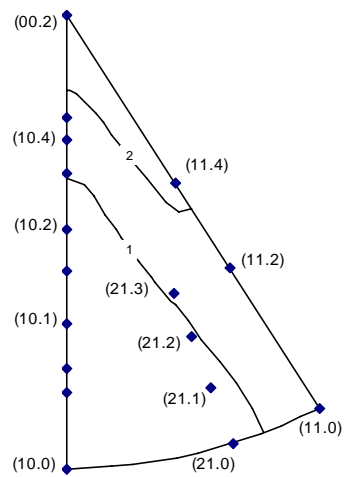
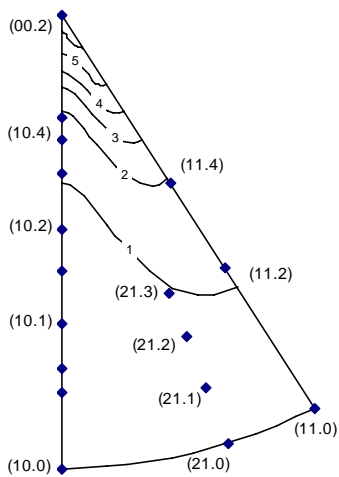
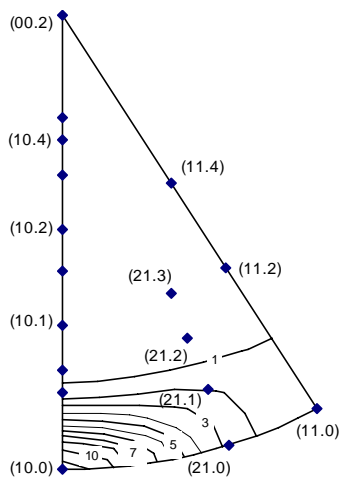
В табл. 2 и 3 приведены характеристики микроструктуры материала канальной трубы (уровень микроискажений и размер ОКР), рассчитанные по графикам Вильямсона-Холла для указанных выше кристаллографических серий (см. рис. 2), текстурно-усреднённые в пределах каждого из трёх направлений.

Таблица 2

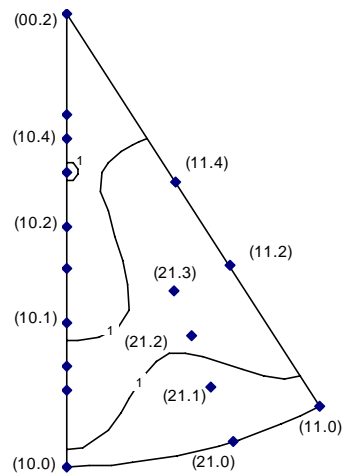
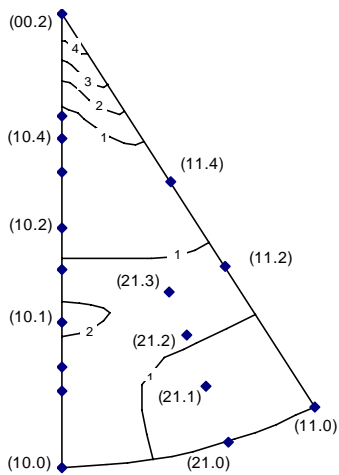
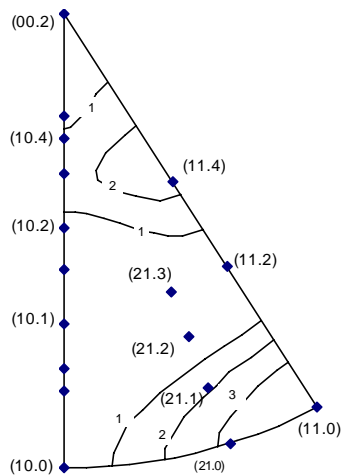
Уровень микроискажений для трёх направлений канальной трубы в исходном и СВЧ-обработанном состояниях. Данные приведены по сериям кристаллографических плоскостей

Состояние канальной трубы	Направление	Микроискажения ε , %			
		(00.2)	(hk.0)	остальн. (hk.L)	средн.
Исходное	LD	0,03	0,07	0,04	0,06
	TD	0,03	0,03	0,04	0,03
	RD	0,03	0,03	0,04	0,03
СВЧ-обаб. (980 °С)	LD	0,22	0,23	0,20	0,22
	TD	0,21	0,22	0,23	0,23
	RD	0,22	0,26	0,24	0,24
СВЧ-обаб. (1030 °С)	LD	0,22	0,24	0,24	0,24
	TD	0,23	0,25	0,25	0,24
	RD	0,19	0,22	0,21	0,20

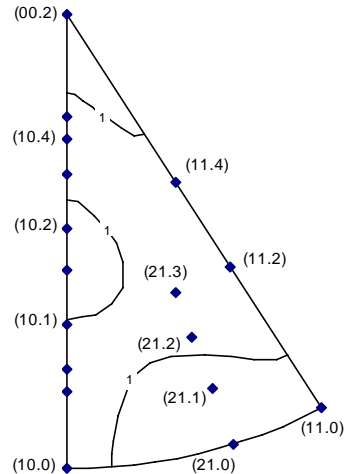
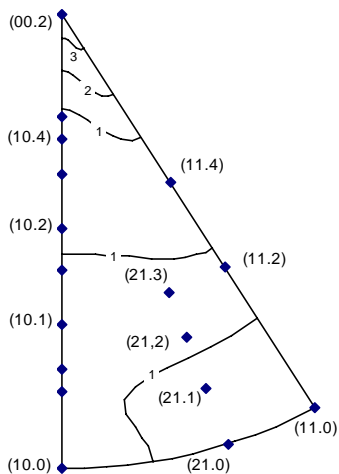
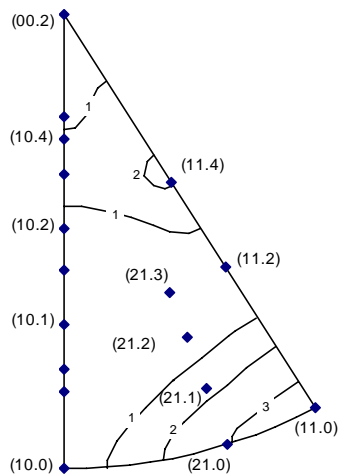
Исходное состояние



СВЧ-обработка с нагревом до 980 °С



СВЧ-обработка с нагревом до 1030 °С



LD

TD

RD

Рис. 1. Обратные полюсные фигуры канальной трубы в продольном (LD), поперечном (TD) и радиальном (RD) направлениях для исходного и СВЧ-обработанных образцов с нагревом до температур 980 и 1030 °С

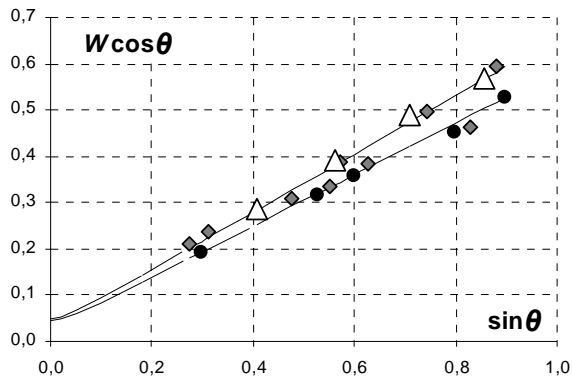


Рис. 2. Графики Вильямсона-Холла для окрестности (00.L) (•), (hk.0) (◆) и остальных плоскостей (hk.L) (Δ) в направлении TD канальной трубы после СВЧ-обработки с нагревом до 980 °C

Таблица 3
Размер ОКР в трёх направлениях канальной трубы в исходном и СВЧ-обработанном состояниях. Данные приведены по сериям кристаллографических плоскостей

Состояние канальной трубы	Направление	Размер ОКР D, нм		
		(00.2)	(hk.0)	остальн. (hk.L)
Исходное	LD	> 300	~60	130
	TD	60	130	60
	RD	90	110	50
СВЧ-обработ. (980 °C)	LD	> 300	90	50
	TD	150	80	80
	RD	120	110	80
СВЧ-обработ. (1030 °C)	LD	> 300	140	110
	TD	250	130	190
	RD	70	70	70

Как видно из данных табл. 2, при СВЧ-обработке с нагревом до 980 или 1030 °C уровень микроискажений материала канальной трубы увеличивается почти на порядок. При этом имеется как кристаллографическая, так и геометрическая изотропия микроискажений. Пересчёт на уровень микронапряжений даёт для материала СВЧ-обработанных труб величину $\approx 230 \dots 260$ МПа. Для исходного состояния трубы эти значения составляют $\approx 30 \dots 60$ МПа.

В отличие от микронапряжений размер ОКР в материале СВЧ-обработанной канальной трубы характеризуется как кристаллографической, так и геометрической анизотропиями. Кристаллографическая анизотропия представляет собой различие размера ОКР в рассматриваемом направлении от серии линий, выбранной для его расчета. В материале СВЧ-обработанной трубы с нагревом до 1030 °C кристаллографическая изотропия ОКР присуща только направлению RD, в двух других направлениях (LD и TD) материал СВЧ-обработанной трубы кристаллографически анизотропен (см. табл. 3). Геометрическая анизотропия представляет собой различие размера ОКР в зависимости от выбранного направления относительно основных направлений в трубе (для каждой из серий линий). Нет систематической корреляции размера ОКР и направления относи-

тельно осей трубы в образцах, вырезанных с участка, закаленного от 980 °C. В образцах, вырезанных с участка, закаленного от 1030 °C, размер ОКР зависит от рассматриваемого направления относительно основных направлений в трубе: размеры ОКР в направлениях LD и TD, оцененные по каждой из серий линий, практически равны между собой, что свидетельствует о равноосности ОКР в этих направлениях; при этом в направлении RD, вне зависимости от серии линий, выбранной для расчета, размер ОКР несколько меньше, чем в двух других направлениях.

Таким образом, СВЧ-обработка с $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ -превращением наряду с разрушением текстуры приводит также согласно данным табл. 2 и 3 к изотропии характеристик микроструктуры. При этом изотропия формы ОКР оказывается наиболее чувствительной к режиму СВЧ-обработки. Повышение изотропии характеристик микроструктуры свидетельствует о равновероятном действии множества кристаллографических систем деформации в материале, претерпевшем $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ -превращение.

По полученным характеристикам микроструктуры с использованием формул (7) и (8) для материала труб в исходном состоянии и после СВЧ-обработки оценена плотность дислокаций по Вильямсону-Смоллмену. Значения её приведены в табл. 4.

Таблица 4
Плотность дислокаций в материале канальной трубы в исходном и СВЧ-обработанном состояниях

Тип дислокации	Плотность дислокаций ρ , 10^{14} м^{-2}		
	Исходное состояние	СВЧ-обработка (980 °C)	СВЧ-обработка (1030 °C)
a	1,1	5,2	4,5
c + a	0,3	1,0	1,1

ВЫВОДЫ

Проведены рентгеновские исследования текстуры и микроструктуры сплава Zr-2.5%Nb по съёмкам в трёх геометрических проекциях образцов канальной трубы в исходном состоянии и после СВЧ-обработки с нагревом до температур 980 и 1030 °C.

Проведена обработка первичных данных съёмки с применением модифицированного метода аппроксимаций профилей дифракционных линий и хода графиков Вильямсона-Холла. Модифицированный метод аппроксимации применён также для определения приборных параметров уширения по съёмкам эталонного образца.

Установлено, что СВЧ-обработка канальной трубы, проведенная на установке «Вертикаль», существенно разрушает её кристаллографическую текстуру. При этом параметры Кернса достигают значений, близких к их соответствию изотропному материалу. Отклонение не превышает $\pm 10\%$.

СВЧ-обработка с $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ -превращением наряду с разрушением текстуры приводит также к устранению анизотропии микроискажений. Степень изотропии формы ОКР оказывается чувствительной к режиму СВЧ-обработки.

В материале СВЧ-обработанной канальной трубы (с нагревом до 980 и 1030 °С) плотность дислокаций, оцененная по Вильямсону-Смоллмену, примерно в четыре-пять раз выше, чем в исходном состоянии, и в среднем равна $3,5 \dots 4,5 \cdot 10^{14} \text{ м}^{-2}$.

ЛИТЕРАТУРА

1. G.V. Harris. Quantitative measurement of preferred orientation in rolled uranium bars // *Phil. Mag.* 1952, v. 43, № 336, p. 113-123.
2. P.R. Morris. Reducing the effects of non-uniform pole distribution in inverse pole figure studies // *J. Appl. Phys.* 1976, v. 30, № 4, p. 595 -596.
3. Н.В. Агеев, А.А. Бобарэко, С.Я. Бецоффен. Метод обратных полюсных фигур // *Известия АН СССР. Серия «Металлы»*. 1974, № 1, с. 94.
4. J. Kearns. Thermal expansion and preferred orientation in zircalloy // *USAEC WAPD-TM-472*. Nov, 1965.
5. А. Гинье. *Рентгенография кристаллов* / Пер. 2-го французского издания/ Под ред. ак. Белова Н.В. М.: Гос. изд. физ.-мат. литературы, 1961.
6. В.И. Иверонова, Г.П. Ревкевич. *Теория рассеяния рентгеновских лучей*. М.: Изд. Московского университета, 1972.
7. Д.Г. Малыхин, В.В. Корнеева, Т.Ю. Гуральник. Разделение микроструктурных эффектов дифракции по полуширине рентгеновских линий // *Вісник Харківського університету. Сер. Фізична: «Ядра, частинки, поля»*, 2008, № 2(38), с. 77-80.
8. W.H. Hall. X-ray line broadening in metals // *Proc. Phys. Soc.* 1949, v.A62: *Letters to the editor*. p.741-743.
9. G.K. Williamson, R.E. Smallman. Dislocation Densities in Some Annealed and Cold-Worked Metals from Measurements on X-Ray Debye-Sherrer Spectrum // *Phil. Mag.* 1956, v.1, № 1, p. 34 - 46.
10. M. Griffiths, J.E. Winegar, J.F. Mecke, R.A. Holt. Determination of dislocation densities in hexagonal close-packed metals using X-ray diffraction and transmission electron microscopy // *Advances in X-ray Analysis*. 1992, v.35, p. 593-599.
11. Д. Дуглас. *Металловедение циркония*. М.: «Атомиздат», 1975.

Статья поступила в редакцию 10.09.2008 г.

ДОСЛІДЖЕННЯ ВПЛИВУ СВЧ-ТЕРМООБРОБКИ НА ТЕКСТУРУ Й СУБСТРУКТУРУ СПЛАВУ Zr+2,5%Nb

Д.Г. Малыхин, В.В. Корнеева, В.М. Грицина, Т.П. Черняева, Е.О. Михайлов

Проведено рентгенівські дослідження текстури й визначено характеристики мікроструктури (рівень мікроперекручувань і розміри областей когерентного розсіювання (ОКР)) матеріала канальної труби у вихідному стані (у стані постачання) і після СВЧ-термообробки при температурах 980 і 1030 °С. Застосовано модифікований метод апроксимації профілю дифракційних ліній і ходу графіків Вільямсона-Холлу. Встановлено, що СВЧ-термообробка канальної труби з нагріванням до зазначених температур руйнує її кристалографічну текстуру й сприяє формуванню розвинутої ізотропної мікроструктури. Показано, що форма ОКР чутлива до умов гартування. Визначено щільність дислокацій досліджених матеріалів за Вільямсоном-Смоллменом.

STUDYING OF INFLUENCE OF SHF-TREATMENT ON THE STRUCTURE AND THE SUB-STRUCTURE OF ALLOY Zr+2,5%Nb

D.G. Malykhin, V.V. Kornyejeva, V.M. Gritsina, T.P. Tchernyaeva, E.A. Mihajlov

X-ray researches of texture and microstructure characteristics – level of microstrains and particles sizes – are carried out on the material of channel tube in an initial state (regular treatment) and after high-frequency heat treatment at temperatures 980...1030 °С. The modified approximation method of X-ray lines profile and trends of Williams-Hall plots is applied. It is established, that high-frequency heat treatment of a channel tube in the mentioned range of temperatures destroys its crystallographic texture and promotes formation of the developed isotropic microstructure. It is shown, that particles sizes equiaxiality is sensitive to quenching conditions. The density of dislocations in the investigated materials is estimated by Williamson-Smallman method.