

ОСОБЕННОСТИ ВЫДЕЛЕНИЯ ГИДРИДНОЙ ФАЗЫ В ЗОНЕ РАЗРУШЕНИЯ КАНАЛЬНЫХ ТРУБ ИЗ СПЛАВА Zr-2*Nb И МЕХАНИЗМЫ ЗАМЕДЛЕННОГО ГИДРИДНОГО РАСТРЕСКИВАНИЯ

Ю.А.Перлович, М.Г.Исаенкова,

Московский Инженерно-Физический Институт, Москва, Россия

Юнг Сок Ким, Санг Су Ким

Корейский Исследовательский Институт Атомной Энергии, Теджон, Южная Корея

Аннотация: Проведено рентгеновское изучение поверхностей разрушения наводороженных образцов канальной трубы, изготовленной из сплава Zr-2.5%Nb по технологии CANDU и подвергнутой отжигу для снятия остаточных напряжений. Консольные образцы с надрезом испытывались под нагрузкой до разрушения в условиях замедленного гидридного растрескивания. Впервые были зафиксированы рентгеновские отражения от гидридных выделений на поверхности разрушения, перпендикулярной тангенциальному направлению трубы, и выявлена текстура гидридной фазы. Установлены факты повышенной концентрации гидридов и их переориентации вблизи поверхности разрушения. Зафиксирована переориентация α -зерен в зоне пластической деформации вблизи поверхности хрупкого излома, связанного с локальным повышением содержания гидридов. На основе рентгеновских данных установлено ориентационное соотношение между решетками δ -гидрида и α -Zr, а также проанализирован вопрос о габитусных плоскостях гидридных выделений.

1. ВВЕДЕНИЕ. ИСТОРИЯ ВОПРОСА.

Несмотря на многолетнюю историю изучения процесса замедленного гидридного растрескивания (ЗГР), до сих пор не найдено однозначного ответа на вопрос об относительной важности различных факторов, контролирующих этот процесс. Поскольку структурные особенности труб из сплавов на основе Zr в силу модификации технологии их производства постоянно меняются, а методы экспериментального исследования непрерывно совершенствуются, необходимой оказывается повторная постановка все новых работ по изучению ЗГР. В данной работе для изучения ЗГР в канальной трубе, изготовленной по технологии CANDU из сплава Zr-2.5%Nb и подвергнутой термообработке для снятия остаточных напряжений, использованы богатые возможности современной рентгеновской дифрактометрии.

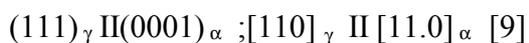
Закономерности образования гидридной фазы в изделиях из сплавов на основе Zr исследуются уже с 50-х годов. В частности, при использовании оптической и электронной микроскопии были получены многочисленные и нередко взаимно противоречивые данные о плоскостях габитуса гидридов в α -Zr. Так, согласно самым первым данным [1], плоскостями габитуса гидридов являются

плоскости призматического скольжения {10.0}. Несколько позднее появились сведения [2] о совпадении плоскостей габитуса гидридных выделений с плоскостями двойникования α -Zr: {10.2}, {11.1}, {11.2}-для чистого Zr и {11.1}, {11.3}, {12.1}-для сплава Zr-1%O. Причем, с увеличением содержания водорода растет число габитусных плоскостей, наблюдаемых в пределах каждого отдельного зерна α -Zr. В работе [3] сообщается, что, помимо плоскостей призматического скольжения и двойникования, плоскостями габитуса являются плоскости пирамидального скольжения {10.1}, а также плоскости {10.5} и другие плоскости типа {10.L}. В ходе продолжительной литературной дискуссии по поводу плоскостей габитуса {10.7} [4-5] было рассмотрено влияние самых разных экспериментальных факторов на процессы выделения гидридов. Специальные исследования были посвящены изучению морфологии гидридных выделений на межзеренных границах [6-7]. Чтобы энергия деформации решетки при образовании гидрида была минимальной, габитусная плоскость должна быть ориентирована относительно границы зерна определенным образом, - поэтому не все границы содержат гидриды. Таким образом, вполне оправданным представляется мнение, высказанное ав-

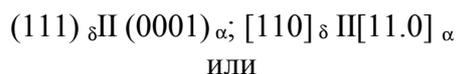
тором обзора [8] еще в 1968 г.: «число габитусных плоскостей гидридной фазы в α -Zr равняется числу выполненных исследований, и этот вопрос все еще остается до некоторой степени противоречивым.

Чаще всего в роли габитусных плоскостей оказываются плоскости с повышенной дислокационной плотностью, играющие активную роль в процессе пластической деформации α -Zr, то есть плоскости двойникования и скольжения (призматического, пирамидального или базисного), а также плоскости типа $\{10.L\}$ и, в частности, (10.7). Очевидно, именно в этих плоскостях деформация кристаллической решетки α -Zr, сопряженная с образованием гидридов, является наименьшей, поскольку компенсируется ее локальной искаженностью в окрестностях многочисленных дислокаций.

Игольчатые частицы γ -гидрида, имеющего тетрагональную кристаллическую решетку, образуются из α -Zr при повышенных скоростях охлаждения с ориентационным соотношением:



В случае медленного охлаждения наводороженных сплавов Zr образуется δ -гидрид, имеющий ГЦК решетку и наиболее часто характеризующийся ориентационными соотношениями:



В дальнейшем, по мере совершенствования экспериментальных методов, полученные ранее данные уточнялись и детализировались применительно к разным сплавам на основе Zr, претерпевшим разные обработки, подвергнутым наводороживанию по разным режимам в разных структурных состояниях и т.д.. При систематизации электронно-микроскопических наблюдений авторы пытаются учитывать многообразие локальных условий, предопределяющих морфологические и кристаллографические особенности гидридных выделений. В этом плане характерны работы [11-13].

Согласно установившейся точке зрения [14], ориентация гидридов в матрице α -Zr зависит от характера действующих напряжений. Растягивающие напряжения изменяют плоскость габитуса таким образом, что пластинки гидрида, обладающие по сравнению с матрицей меньшей плотностью, ориентируются перпендикулярно этим напряжениям. В результате снижаются энергия деформации решетки и уровень напряжений. Когда выделение гидридов происходит в условиях нагружения образца, их морфология и ориентация определяются всей совокупностью факторов, влияющих на этот процесс. В частности, образование гидридных пластин перпендикулярно направлению растягивающих напряжений облегчается или затрудняется в зависимости от наличия в матрице соответственно расположенных межзеренных границ и от наличия достаточного количества зерен α -Zr с подходящей ориентацией возможных плоскостей габитуса.

Замедленное гидридное растрескивание (ЗГР) образца, находящегося под нагрузкой при температуре эксплуатации изделия, активизируется вблизи надреза или зародышевой трещины и включает целый ряд процессов:

- частичное растворение гидридов, образовавшихся до появления концентратора напряжений безотносительно к воздействию нагружения;
 - диффузия водорода к участку с растянутой кристаллической решеткой;
 - локальная пластическая деформация вблизи вершины надреза;
 - переориентация решетки α -Zr в зоне пластической деформации;
 - образование новых гидридных пластин с внешней ориентацией, задаваемой нагружением, и с габитусными плоскостями, зависящими от кристаллографической ориентации матрицы в зоне концентрации растягивающих напряжений вблизи вершины надреза;
 - концентрация напряжений вблизи краев вновь образовавшихся гидридных пластин и возникновение условий для скачка трещины.
- Многочисленное повторение цикла указанных процессов и распространение их на всю большую площадь сечения изделия в конечном итоге приводит к его разрушению. Та-

ким образом, предотвращение ЗГР предполагает изучение весьма разнородных явлений и процессов - от формирования гидридных частиц до переориентации α -Zr в зоне концентрации напряжений и движения трещины в структурно неоднородном материале. Наиболее яркие эффекты, сопряженные с ЗГР и привлекающие активное внимание исследователей, - перераспределение и переориентация гидридных выделений в зоне разрушения изделий из циркониевых сплавов. Достаточно полное представление о современном состоянии проблемы ЗГР дают работы [15-16], где, в частности, проводится экспериментальное определение остаточной деформации и микронапряжений в матрице и вблизи гидридных частиц, а также оценивается критическое напряжение, достаточное для переориентации гидридов, в зависимости от особенностей микроструктуры, величины предела текучести и остаточных напряжений. Известно влияние текстуры на переориентацию гидридов при ЗГР [17], выявленное при сопоставлении результатов испытания образцов, которые были вырезаны из канальной трубы сплава Zr-2.5%Nb вдоль и поперек ее осевого направления. Текстура трубы была такова, что базисные нормали располагались вблизи тангенциального направления T. При испытании продольных образцов переориентация первоначальных гидридов не происходила, новые трещины не образовывались, а рост трещин, инициированных надрезом, был очень медленным, тогда как в поперечных образцах переориентация гидридов происходила легко, возникали многочисленные новые трещины, а трещины из надреза росли в 25 раз быстрее, чем в продольных образцах при тех же условиях. В материалах последних Международных Симпозиумов «Цирконий в ядерной промышленности», организуемых Американским Обществом Испытаний и Материалов (ASTM), опубликован ряд работ, посвященных изучению особенностей развития гидридного охрупчивания в конкретных изделиях. Так, в работе [18] рассмотрено ЗГР в сварных швах каландровых труб из сплава Zr-2.5%Nb под воздействием остаточных сварочных напряжений, а в работе [19] - в

оболочечных трубах из сплава Циркалой-2 в зависимости от величины их предела текучести и температуры испытания.

В связи с вопросами гидридного охрупчивания изучались также особенности разрушения образцов циркониевых сплавов, содержащих включения гидридов. В частности, при использовании электронной микроскопии с достаточно большим увеличением показано, что частицы гидридов не только играют роль концентраторов напряжения в матрице α -Zr, но способны также изменять направление движения трещины в соответствии с собственными структурными особенностями, с собственными механизмами деформации и разрушения [20].

2. ПРИГОТОВЛЕНИЕ ОБРАЗЦОВ И МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ

В данной работе при использовании методов современной рентгеновской дифрактометрии было предпринято прямое изучение гидридов в зоне разрушения образцов, вырезанных из канальной CANDU трубы из сплава Zr-2.5%Nb. Причем, основное внимание было уделено рентгеновскому наблюдению гидридной фазы на поверхности разрушения и выявлению переориентации матрицы α -Zr вблизи этой поверхности. Данные рентгеновской дифрактометрии характеризуются относительно высокой статистической значимостью и потому являются надежным источником информации о природе изучаемых процессов.

Рентгеновское дифрактометрическое изучение поверхностей разрушения включало: (а) регистрацию дифракционного спектра и фазовый анализ, (б) построение обратных полюсных фигур (ОПФ) [21], (в) построение прямых полюсных фигур (ППФ) для α -Zr и гидридной фазы [22]. Использован автоматизированный текстурный рентгеновский дифрактометр SIEMENS 05000, снабженный позиционно-чувствительным детектором с углом раскрытия 6° . Была использована рентгеновская трубка с медным анодом. Применялись не только стандартные методики с обработкой результатов измерений на основе программного обеспечения дифрак-

тометра, но и их модификации с использованием программ, разработанных авторами.

Восстановление полных ППФ проводили с помощью функции распределения ориентаций (ФРО) [211, которую строили на основе экспериментально полученных неполных ППФ, используя имеющийся комплекс программ.

Работа включала рентгеновское изучение поверхностей разрушения, полученных при испытании консольно-закрепленных образцов при 250°C после их насыщения водородом до содержания 50 ppm. Для изготовления образцов была использована канальная CANDU-труба из сплава Zr-2.5%Nb, отожженная для снятия остаточных напряжений при температуре 400°C в течение 24 час. Образцы вырезали под углами 90° (образец 1) и 60° (образец 2) к осевому направлению трубы

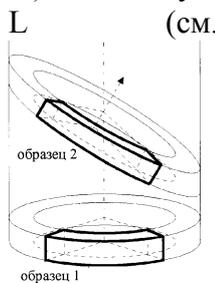


Рис. 1. Схема вырезания образцов из канальной трубы.

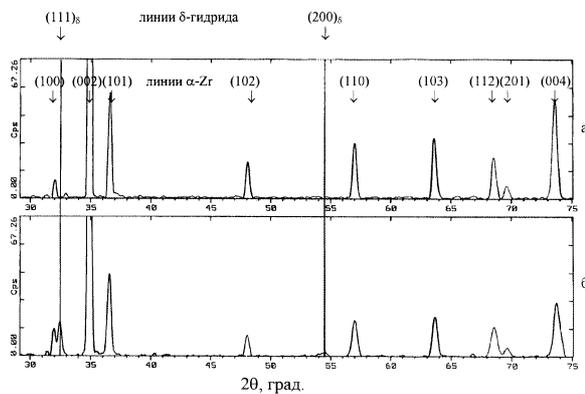


Рис.2. Дифракционные спектры образца 1 : а) Т-сечение трубы; б) поверхность разрушения.

Использованная труба имела текстуру тангенциального типа, при которой базисные плоскости располагаются перпендикулярно оси Т. Изучали относительно плоские участки хрупкого излома на поверхностях разрушения, а также, для сравнения, сечения образца, параллельные излому, но удален-

ные от него и потому не претерпевшие структурных изменений вследствие локальной пластической деформации вблизи вершины трещины.

Надрез наносили на грань образца, совпадающую с внутренней поверхностью трубы. В случае образца 1 плоскость надреза была параллельна Т-сечению трубы (перпендикулярному тангенциальной оси Т), в случае образца 2 - наклонена к Т- сечению на 30°. При испытании образец 1 претерпевал растяжение вдоль Т-оси, а образец 2 - под углом 30° к этой оси. Начальное значение коэффициента интенсивности напряжений K_1 у вершины надреза, рассчитываемое с учетом величины приложенной нагрузки [23], равнялось 17 МПа м⁻² а конечное значение - менее 15 МПа м⁻². Рост трещины контролировали при использовании метода акустической эмиссии. У обр.1 поверхность разрушения размером 4x5 мм оказалась параллельна плоскости надреза и была образована двумя участками, которые в первом приближении соответствовали хрупкому и вязкому типам разрушения. Участок хрупкого разрушения занимал большую часть поверхности разрушения и был относительно плоским, что способствовало снижению погрешностей при рентгеновском исследовании. Помимо поверхности разрушения, изучали также поверхность Т-сечения, отстоящего от поверхности разрушения на 20 мм. У обр.2 поверхность разрушения отклонилась от первоначальной плоскости надреза на 25°. Доступным для рентгеновского изучения был только ее малый плоский участок размером 1x3 мм. Длительность испытания образца 1 до разрушения составила 12 час., образца 2 - 16.5 час.

3. ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Анализ процессов, сопряженных с ЗГР, требует рассмотрения структурных изменений в зоне разрушения образца, включая пластическую деформацию α-Zr матрицы и переориентацию гидридных выделений. При рентгеновском изучении поверхности разрушения принимается во внимание следующее:

- толщина слоя половинного ослабления для излучения Cu Ka в исследуемом материале

варьируется в пределах нескольких микрон в зависимости от угла Вульфа- Брегга 2θ регистрируемого отражения (hkl) и угла наклона образца α , так что получаемые данные характеризуют структуру слоя толщиной, по крайней мере, до 20 мкм;

- поверхность разрушения формируется в результате прохождения через материал трещины и связанной с ней волны пластической деформации, локальная величина которой убывает по мере удаления от вершины трещины, а непосредственно на поверхности разрушения соответствует исчерпанию ресурса пластичности материала для данных условий нагружения и заведомо достаточна для существенной переориентации зерен матрицы α -Zr [27-28].

3.1 Рентгеновское наблюдение гидридной фазы

Дифракционные спектры, полученные при съемке образца 1, представлены на рис.2: для Т-сечения, удаленного от поверхности разрушения на 20 мм (а) и для самой поверхности разрушения (б). Дифракционный спектр поверхности разрушения обр.1 содержит, помимо рентгеновских линий α -фазы, две линии δ -гидрида, имеющего кубическую решетку, - (111) и (200), тогда как в спектре Т-сечения, удаленного от поверхности разрушения, эти линии отсутствуют. Значит концентрация гидридных выделений на поверхности разрушения обр.1 значительно выше, чем в первоначальном Т-сечении того же образца. Это дает основания для следующих утверждений: (1) разрушение происходит по плоскости преимущественного залегания гидридных частиц; (2) вблизи поверхности разрушения происходят перераспределение и переориентация гидридных выделений.

На рис.3-а представлена неполная ПФ {111} гидридной фазы, полученная при съемке поверхности разрушения обр.1. Судя по дифракционному спектру (рис.2-б), на поверхности разрушения обр.1 наблюдаются две ориентации гидридной фазы - параллельно поверхности разрушения в гидридных частицах располагаются кристаллографические плоскости {111} или {001}. Положение плоскостей {111} с высокой точностью яв-

ствует из центральной части ПФ {111}, показанной на рис.3-а, тогда как вторая текстурная компонента, близкая к {001}, на этой ПФ не видна, поскольку ее максимумы расположены в пределах периферийной области. В спектре поверхности разрушения обр.2 линии гидридной фазы отсутствуют, - по крайней мере, при положении образца, соответствующем регистрации спектра для центральной точки ПФ. Однако, автоматическая обработка результатов текстурных измерений с использованием позиционно-чувствительного детектора при учете возможного присутствия гидридной фазы позволяет построить ПФ {111}_{гидр} также и для этого образца (рис.3-б). Следовательно, в обр.2 выделение гидридов и разрушение происходят иначе, нежели в обр.1, что связано, очевидно, с изменением направления растягивающих напряжений по отношению к решетке α Zr.

3.2 Переориентация α -Zr в зоне пластической деформации вблизи поверхности разрушения

Сопоставление дифракционных спектров α -матрицы, измеренных для первоначального Т-сечения и для поверхности разрушения обр.1, свидетельствует о существенном перераспределении интенсивности рентгеновских линий, сопряженном с хрупким разрушением (рис.2). Так как исследуемая труба имеет текстуру Т-типа, то есть на ПФ(0001) максимум плотности базисных нормалей лежит вблизи проекции оси Т (рис.4), для большинства зерен ось растяжения при испытании консольно- закрепленного образца совпадает с направлением $\langle 0001 \rangle$ или близка к нему.

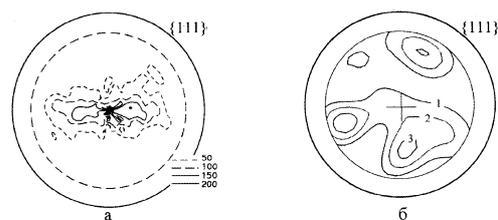


Рис. 3. ПФ {111} δ гидридной фазы в слое, прилегающем к поверхности разрушения: а)

образец 1 (ПФ построена в ед. Регистрируемой интенсивности); б) образец 2.

Нормаль к поверхности разрушения совпадает с центром ПФ. Угловой радиус ПФ - 50° .

Согласно [24-26], при такой ориентации оси растяжения пластическая деформация образца реализуется путем двойникования по плоскостям $\{10.2\}$. В результате этого базисная нормаль меняет свою ориентацию скачкообразно, так что ее новая ориентация оказывается отстоящей от первоначальной на 85° . Простой графический анализ [27] (см. рис.5) позволяет предсказать изменение обратной полюсной фигуры (ОПФ) образца вследствие двойникования.

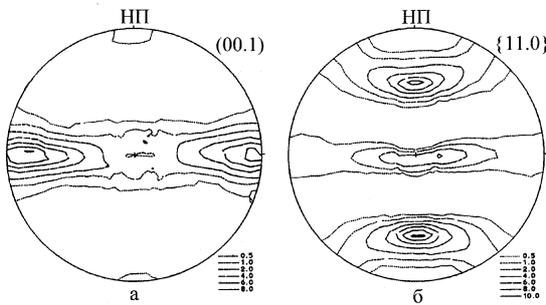


Рис. 4. ПФ $(00.1)\alpha$ (а) и $\{11.0\}\alpha$ (б) для трубы, изготовленной по технологии CANDU. В центре ПФ - направление R. Угловой радиус ПФ - 90° .

Главная особенность этой переориентации в рассматриваемом случае состоит в резком падении полюсной плотности вблизи полюса $\langle 0001 \rangle$ и в ее увеличении на противоположной стороне стереографического сектора. В частности, ожидается увеличение полюсной плотности для полюса $\langle 10.0 \rangle$, соответствующего нормали к плоскостям призматического скольжения. Следовательно, в результате двойникования по плоскостям $\{10.2\}$ вклад призматических плоскостей в T-сечение образца становится значительно большим, чем прежде.

Однако, если двойникование охватывает лишь часть отражающих зерен, результирующая переориентация оказывается неполной, так что имеет место только некоторое уменьшение полюсной плотности вблизи полюса $\langle 0001 \rangle$ при слабом её относительном увеличении на противоположной стороне

ОПФ. Аналогичная ситуация будет наблюдаться в случае переориентации в пределах слоя, толщина которого существенно меньше толщины слоя половинного ослабления рентгеновского излучения в исследуемом материале. Принимая во внимание, что при хрупком изломе толщина зоны пластической деформации, прилегающей к поверхности разрушения, составляет не менее нескольких микрон [28] и сопоставима с толщиной слоя половинного ослабления, эффект переориентации в пределах этой зоны в принципе может быть зафиксирован.

В работе [29] эффект двойникования при поперечном растяжении листовых образцов сплава Zr-1%Nb был четко выявлен, хотя исходная текстура образца не была оптимальна для подобных наблюдений, - на ПФ(0001) текстурные максимумы отстояли от R-направления на 45° , так что на ОПФ максимум полюсной плотности первоначально располагался в центре, а в результате испытания образца оказывался смещенным к полюсу $\langle 10.0 \rangle$. Хотя, в отличие от случая вязкого разрушения [29], в настоящей работе рассматривается хрупкое разрушение наводороженных образцов, используемые принципы кристаллографического анализа остаются теми же, и поэтому работа [29] служит для нас отправным пунктом.

На рис.6 представлены ОПФ для исходного T-сечения обр.1 (а) и для его поверхности разрушения (б). Распределения полюсной плотности на обеих ОПФ принадлежат к одному и тому же типу, несмотря на довольно значительные количественные различия. Чтобы уточнить характер переориентации, происходящей при разрушении, в пределах стереографического сектора строили распределение отношения P_i/P_0 (рис.б-в), где P_0 и P_1 - исходная и конечная полюсные плотности, соответственно. Можно видеть, что это распределение подобно ожидаемому при переориентации за счет двойникования (см. рис.5). Следовательно, в рассматриваемом случае хрупкого разрушения на поверхности излома двойникование вызывает частичную переориентацию α -зерен, хотя очевидно, что эта переориентация не охватывает весь отражающий объем материала. Наиболее вероят-

но, что толщина слоя переориентации не превышает 1-2 мкм. На рис.7 представлены экспериментальные неполные ПФ (0001) (а,в), и $\{10.1\}$ (б,г) для исходного Т-сечения (а,б) и для поверхности разрушения (в,г), а на рис.8 - расчетная полная ПФ $\{10.7\}$ для Т-сечения, восстановленная при использовании функции распределения ориентаций (ФРО) [21]. Очевидно, что ПФ(0001) (рис.7-а) в принципе сохраняет свой первоначальный характер, включая вторичные детали распределения, среди которых некоторая асимметрия текстурного максимума по отношению к плоскости Т-Л и сдвиг его вершины вправо.

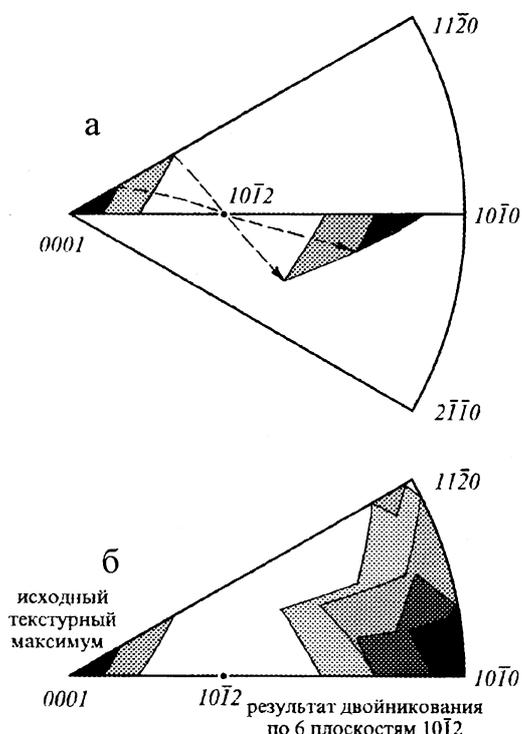


Рис. 5. Графический анализ переориентации зерен α -Zr при двойниковании по плоскостям $\{10.2\}$: а) принцип определения нового положения текстурного максимума, соответствующего переориентации зерен в результате двойникования по плоскостям $\{10.2\}$; б) ОПФ, прогнозируемая как результат двойникования зерен по 6 эквивалентным плоскостям $\{10.2\}$

Следует заключить, что поверхность разрушения совпадает с Т-сечением трубы с высокой степенью точности и что разрушение происходит по плоскости, перпендикуляр-

ной направлению растягивающего усилия. В то же время, изменение формы текстурного максимума при его понижении свидетельствует о том, что переориентация базисных нормалей из окрестностей Т-направления происходит не пропорционально полюсной плотности, а в зависимости от углового расстояния от этого направления.

На рис.9 на стереографической проекции образца представлена диаграмма отношения I_1/I_0 где I_1 и I_0 равны интенсивностям рентгеновской линии (0002), измеренным при одних и тех же угловых положениях поверхности разрушения и исходного Т-сечения, соответственно. Как и следовало ожидать на основе геометрического анализа процесса двойникования, наиболее интенсивная переориентация базисных нормалей происходит из центральной части показанного текстурного максимума

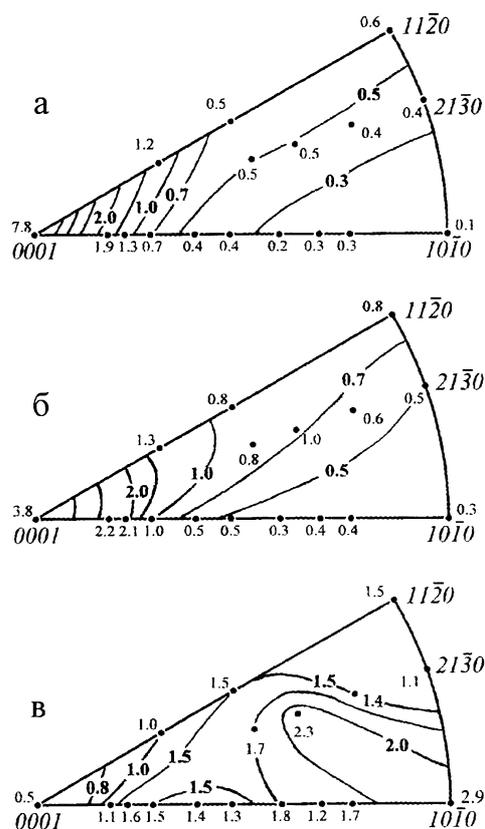


Рис. 6. ОПФ для образца 1: а) Т-сечение трубы, не затронутое пластической деформацией при разрушении; б) поверхность разрушения; в) диа-

грамма, полученная делением ОПФ для поверхности разрушения на ОПФ для исходного Т-сечения (P2/P1).

. Сравнение ПФ{10.1} (рис.7) для Т-сечения (б) и поверхности разрушения (г) четко показывает, что в случае поверхности разрушения полюсная плотность вблизи Т- направления выше, чем в случае Т-сечения. Это является результатом перескока призматических нормалей $\langle 10.0 \rangle$ и пирамидальных нормалей $\langle 10.1 \rangle$ в центральную область ПФ благодаря локальной пластической деформации двойникованием.

3.3 Ориентационное соотношение между гидридной фазой и матрицей α -Zr

Представленные данные позволяют провести весьма детальный анализ кристаллографических закономерностей выделения разрушения. Так как рентгеновские линии гидридной фазы не были обнаружены в спектре исходного Т-сечения, следует заключить, что процесс разрушения сопряжен с интенсивным выделением гидридов.

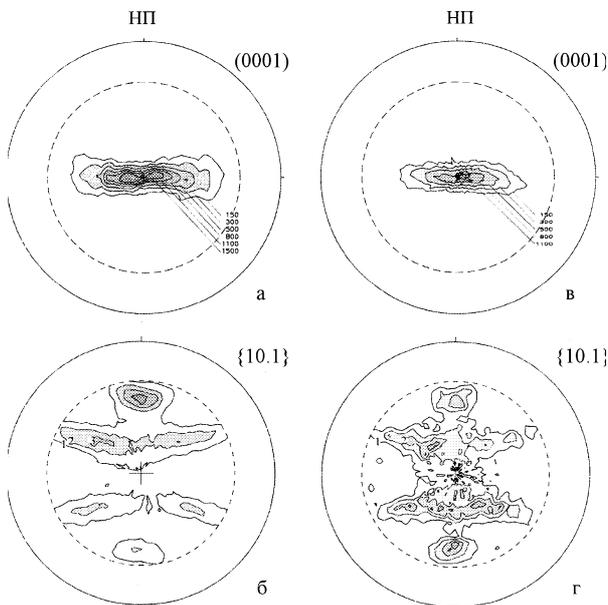


Рис.7 ППФ(0001) (а,в) и {10.1} (б,г) образца №1: а,б) Т-сечение, в,г) поверхность разрушения- Угловой радиус ПФ - 70°; пф (0001) построены в единицах регистрируемой интенсивности

При анализе ориентационного соотношения между гидридной фазой и матрицей α -Zr существуют две возможности - рассмотреть исходную текстуру матрицы или локальную текстуру, сформировавшуюся в тонкой зоне

пластической деформации (даже при крупном разрушении) в результате переориентации зерен путем двойникования.

Наиболее вероятно, что новые гидриды выделяются в непосредственной близости от поверхности разрушения, то есть в пределах тонкой зоны пластической деформации. Тогда определенное ориентационное соотношение соблюдается между гидридной фазой и переориентированной матрицей. Но если вблизи поверхности разрушения некоторая доля α -зерен сохраняет первоначальную ориентацию, ориентационное соотношение между решеткой этих зерен и гидридов также должно соблюдаться

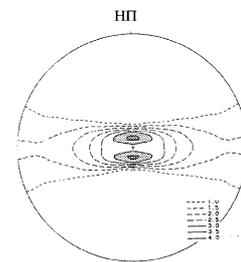


Рис. 8. Расчетная полная ПФ [10.7] для Т-сечения образца 1.

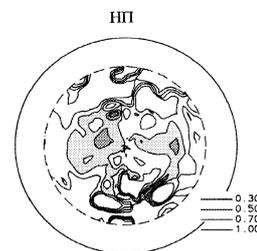


Рис. 9. Переориентация базисных нормалей вблизи поверхности разрушения образца 1: распределение $I_1(\psi, \phi)/I_0$, где I_1 и I_0 равны интенсивностям рентгеновской линии (0002), измеренным в процессе съемки текстуры при одних и тех же угловых положениях (ψ, ϕ) поверхности разрушения (рис. 7-в) и исходного Т-сечения (рис. 7-а), соответственно. Угловой радиус диаграммы - 45°.

Сопоставление ПФ(0001) α (рис.7-г) и ПФ{111}_{гидр} (рис.3-а) для поверхности разрушения свидетельствует об их полном совпадении, так что, по-видимому, гидриды формируются в соответствии с ориентационным соотношением [10]: (111)_{гидр}П(0001) α . Но вторая компонента в текстуре гидрида с плоскостью (001), параллельной поверхности разрушения, не подчиняется ни одному известному ориентационному соотношению,

если ориентацию гидрида соотносить с исходной ориентацией α - матрицы. В результате двойникования в зоне пластической деформации вблизи вершины надреза, как было показано выше путем графического анализа, увеличивается число зерен с призматическими нормальными $\langle 10.0 \rangle$ и пирамидальными нормальными $\langle 10.1 \rangle$ вблизи T-направления. По отношению к этим переориентировавшимся зернам вновь образованные гидридные выделения имеют ориентационное соотношение:

$$(111)_{\text{гидр}} \parallel (10.1)_{\alpha}$$

которое также приводится в литературе [10]. Более того, в этом случае вторая компонента текстуры гидрида может удовлетворять тому же ориентационному соотношению, так как зерна с нормальными $\langle 001 \rangle_{\text{гидр}}$ в центре ПФ имеют нормали $\langle 111 \rangle_{\text{гидр}}$ на расстоянии 55° от центра, тогда как нормали $\langle 10.0 \rangle_{\alpha}$ располагаются и вблизи центра, и на расстоянии 60° от него. При учете размытия текстуры это ориентационное соотношение может рассматриваться, как действующее применительно к обеим компонентам текстуры гидридной фазы.

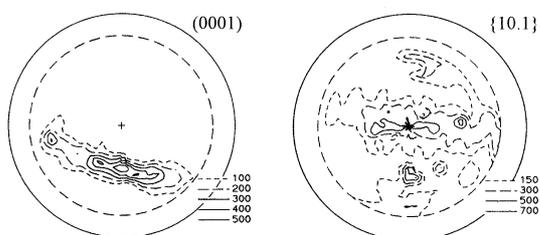


Рис. 10. ПФ (0001) α (а) и {10.1} α (б) поверхности разрушения образца 2. Угловой радиус ПФ - 50° . ПФ построены в единицах регистрируемой интенсивности.

Рентгеновское изучение текстуры образца 2 затруднялось малыми размерами плоского участка на поверхности его разрушения. Поэтому данные, полученные для этого образца, менее систематичны, чем для обр.1. На рис.10 представлена экспериментальная ПФ(0001) для обр.2. Текстурный максимум сдвинут в сторону, указывая точную ориентацию поверхности разрушения по отношению к T- и L-осям трубы. Несмотря на низ-

кую интенсивность рентгеновских отражений от гидридной фазы и связанные с этим существенные погрешности описания ее текстуры, можно видеть, что положения максимумов в распределении нормалей $\langle 111 \rangle_{\text{гидр}}$ (рис.3-б) по отношению к максимумам на ПФ(0001) α (рис.10) то же, что и в случае обр.1 (рис.3-а и рис.7-в, соответственно) - максимумы распределения нормалей $\langle 111 \rangle_{\text{гидр}}$ совпадают с повышениями полюсной плотности в пределах протяженного максимума на ПФ(0001) α . Следовательно, наиболее вероятно, что в обоих образцах гидриды выделяются с одним и тем же ориентационным соотношением.

3.4 О габитусных плоскостях гидридных выделений

Что касается габитусных плоскостей гидридных выделений, их анализ требует некоторых дополнительных предположений относительно взаимной ориентации габитусных плоскостей и поверхности разрушения. В соответствии с наиболее естественным предположением разрушение происходит таким образом, что поверхность разрушения оказывается образованной габитусными плоскостями гидридов. Тогда габитусными плоскостями являются или плоскости (0001) (в случае а- зерен, сохраняющих исходную ориентацию), или плоскости {10.0} и {10.1} (в случае переориентированных α -зерен). О таких плоскостях габитуса сообщается в литературе [8].

Предположение о плоскости габитуса (10.7) не согласуется с полученными экспериментальными данными в случае принятия предположения о совпадении габитусных плоскостей с поверхностью разрушения. Текстурные максимумы на рассчитанной ПФ{10.7} α (рис.8) и изморенной ПФ(111) гидр (рис.3-а) отклонены от центра вдоль взаимно перпендикулярных диаметров.

Экспериментальные электронномикроскопические наблюдения [20] свидетельствуют, что трещина может проходить через гидридные частицы. Было показано, в частности, что гидриды пластически деформируются при температурах выше 100°C путем двойникования и скольжения по плоскостям {111}, тогда как при температурах ниже

100°C гидриды оказываются хрупкими [30]. Чтобы ограничить число рассматриваемых вариантов, необходимо принять во внимание, что гидридные пластины растут перпендикулярно направлению растягивающих напряжений. Поскольку в данном случае поверхность разрушения оказывается также перпендикулярна к этому направлению, можно заключить, что гидридные пластины лежат на поверхности разрушения и что наше первоначальное предположение соответствует действительности. Анализ возможных вариантов развития разрушения в гидридных частицах не добавил бы существенных деталей к принятой схеме взаимодействия процессов выделения гидридов и разрушения.

3.5 Влияние растягивающих напряжений на особенности повторного выделения гидридов.

Сопоставление результатов, полученных для образцов 1 и 2, позволяет оценить влияние различных факторов на развитие процессов, сопряженных с ЗГР, и, в частности, уточнить роль растягивающих напряжений в процессах переориентации гидридов и разрушения. Сам факт предпочтительного роста гидридных частиц в плоскости, перпендикулярной действующим растягивающим напряжениям, представляется вполне естественным, так как увеличение межплоскостных расстояний при переходе от решетки α -Zr к решетке δ -гидрида в этом случае облегчается, благодаря действию внешнего нагружения. В то же время, гидридные частицы характеризуются конкретными габитусными плоскостями и ориентационной связью с матрицей, что налагает дополнительные ограничения на процессы их зарождения и роста. В образцах, вырезанных из трубы под разными углами к осевому направлению, реализуются различные варианты совместного удовлетворения указанных требований к образованию гидридной фазы. Сопоставим следующие экспериментальные наблюдения:

- поверхность разрушения обр.2 значительно отклонилась от плоскости первоначального надреза, перпендикулярной направлению растяжения при испытании, тогда как в слу-

чае обр.1 плоскости разрушения и надреза совпадают;

- в дифракционном спектре поверхности разрушения обр.2, в отличие от случая обр.1, отсутствуют рентгеновские линии гидридной фазы;

- в обр.1 базисные нормали располагаются перпендикулярно направлению растяжения, а в обр.2 - под углом 30° к этому направлению.

На основе полученных данных может быть предложена следующая схема процесса. В обоих образцах вблизи поверхности разрушения новые гидридные частицы выделяются с одним и тем же ориентационным соотношением, но в обр.1 их габитусные плоскости совпадают с поверхностью разрушения, а в обр.2 - не совпадают. Гидридные пластины стремятся, насколько это возможно, приблизиться к положению, перпендикулярному направлению растягивающих напряжений, но, чтобы достичь этого положения, они должны «найти» габитусную плоскость с подходящей ориентацией. Это оказывается возможным в случае обр.1, где перпендикулярно растягивающим напряжениям ориентированы базисные плоскости, становящиеся плоскостями габитуса. Но в случае обр.2 не имеется подходящих плоскостей габитуса вблизи положения, перпендикулярного направлению растягивающих напряжений. В результате, реализуется некое компромиссное расположение гидридных частиц, при котором наиболее удобная траектория трещины проходит через их тело, как это описано в работе [31]. Следовательно, главным фактором, пред определяющим характер разрушения CANDU-трубы под воздействием растяжения вдоль Т-оси, является тангенциальная ориентация базисных плоскостей. Отклонение направления растягивающих напряжений от нормали к базисным плоскостям на 30° приводит к существенному изменению особенностей разрушения. Очевидная причина повышенной склонности труб CANDU к замедленному гидриднему растрескиванию состоит в совпадении различных факторов, способствующих выделению гидридов в Т-сечении трубы или вблизи его.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

(1) Впервые были получены следующие экспериментальные результаты:

- удалось непосредственно наблюдать рентгеновские отражения от гидридных выделений на поверхности разрушения образца, вырезанного из трубы определенным образом;

- установлены факты повышенной концентрации гидридов и их переориентации вблизи поверхности разрушения;

- зафиксирована переориентация α -зерен в зоне пластической деформации вблизи поверхности хрупкого излома, связанного с локальным повышением содержания гидридов;

- выявлена текстура гидридной фазы и по рентгеновским данным установлено ориентационное соотношение между решетками δ -гидрида и α -Zr.

(2) При учете полученных экспериментальных данных рассмотрены основные стадии ЗГР:

- частичное растворение первоначально сформировавшихся гидридов при повышенной температуре испытания;

- повторное выделение гидридов в условиях нагружения и локальной пластической деформации вблизи вершины движущейся трещины;

- интенсификация процесса разрушения под влиянием перераспределения и переориентации гидридной фазы.

(3) В ряду факторов, контролирующих повторное выделение гидридов при ЗГР:

- рост гидридных пластин перпендикулярно направлению приложенных растягивающих напряжений; - переориентация кристаллитов α -Zr вследствие развития локальной пластической деформации, сопряженной с процессом разрушения; - преимущественное образование гидридных частиц с габитусными плоскостями, соответствующими активным плоскостям скольжения пластической деформации вблизи вершины трещины.

Работа выполнена в Корейском Исследовательском Институте Атомной Энергии (Южная Корея) в рамках проекта, финансируемого фондом STERI.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Langeron J.P., Lehr P. Preparation de gros cristaux de zirconium et determination de l'orientation des precipites d'hydrure de zirconium// Rev. Metall., 1958. Vol.55. P.901.
2. Kunz F.W., Bibb A.E. Habit plane of hydride precipitation in zirconium and zirconium-uranium. //Trans. AIME, 1960. Vol.218. P.133.
3. Westlake D.G., Fisher E.S. Precipitation of zirconium hydride in alpha-zirconium crystals// Trans.AIME, 1962. Vol.224. P.254.
4. Babyak W.J. Hydride habit in zirconium and in unstressed and stressed Zircaloy-4// Trans.AIME, 1967. Vol.239. P.232.
5. Roy C., Jacques J.G. (1017) hydride habit planes in single crystal zirconium// J. nucl. Mater., 1969. Vol.31. P.233.
6. Aronachalam V.S., Lentinen B., Ostberg G. The orientation of zirconium hydride on grain boundaries in Zircaloy-2// J. nucl. Mater., 1967. Vol.21. P.241.
7. Ambler G.F.R. Grain boundary hydride habit in Zircaloy-2// J. nucl. Mater., 1968. Vol.28. P.237.
8. Ells C.E. Hydride precipitates in zirconium alloys (a review)// J. nucl. Mater., 1968. Vol.28. P.129.
9. Bailey J.E. Electron microscope observation on the precipitation of zirconium hydride in zirconium// Acta metall., 1963. Vol.II. P.267.
10. Bradbrook J.S., Lorimer G.W., Ridley N. The precipitation of zirconium hydride in zirconium and Zircaloy-2// J. nucl. Mater., 1972. Vol.42. P.142-160.
11. Perovic V., Weatherly G.C., Simpson C.J. Hydride precipitation in α/β zirconium alloys// Acta metall., 1983. Vol.31. N.9. P. 1381-1391.
12. Perovic V., Weatherly G.C. The nucleation of hydrides in α -Zr-2.5 wt % Nb alloy// J. nucl. Mater., 1984. Vol.126. P.160-169.
13. Perovic V., Weatherly G.C., MacEwen S.R., Leger M. The influence of prior deformation on hydride precipitation in Zircaloy// Acta metall. Mater., 1992. Vol.40. N.2. P.363-372.
14. Дуглас Д. Металловедение циркония. М.:Атомиздат. 1975. С.28-36.
15. Bai J.B., Prioul C., Francois D. Hydride embrittlement in Zircaloy-4 plate: Part 1. Influence of microstructure on the hydride embrittlement in Zircaloy-4 at 20°C and 350°C// Metallurgical

- and Materials Transactions A, 1994. Vol.25A. June. P.1185-1197.
16. Bai J.B., Ji N., Gilbon D., Prioul C., Francois D. Hydride embrittlement in Zircaloy-4 plate: Part 11. Interaction between the tensile stress and the hydride morphology// Metallurgical and Materials Transactions A, 1994. Vol.25A. June. P.1199-1208.
17. Coleman C.E. Effect of texture on hydride reorientation and delayed hydrogen cracking in cold-worked Zr-2.5Nb// Zirconium in the Nuclear Industry: Fifth Conference. ASTM STP 754, D.G.Franklin, Ed., American Society for Testing and Materials, 1982. P.393-411.
18. Coleman C.E., Doubt G.L., Fong R.W.L., Root J.H., Bowden J.W., Sagat S., Webster R.T. Mitigation of harmful effects of welds in zirconium alloy components// Zirconium in the Nuclear Industry: Tenth International Symposium, ASTM STP 1245, A.M.Garde and E.R.Bradley.Eds., American Society for Testing and Materials. 1994.P.264-284.
19. Efsing P., Petterson K. The influence of temperature and yield strength on delayed hydride cracking in hydrided Zircaloy-2// Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium, ASTM STP I295, E.R.Bradley and G.P.Sabol.Eds., American Society for Testing and Materials. 1996. P.394-404.
20. Northwood D.O., Gilbert R.W. Hydrides in Zirconium - 2.5 wt.% Niobium pressure tubing// J. Nucl. Mater., 1978. Vol.78. P.112-116.
21. Бородкина М.М., Спектор Э.Н. Рентгенографический анализ текстуры металлов и сплавов// Металлургия, М., 1981.
22. Wcislak L., Bunge H.J. Texture Analysis with a Position Sensitive Detector. Cuvillier Verlag, Göttingen, 1996.
23. Херцберг Р.В. Деформация и механика разрушения конструкционных материалов. М.: Металлургия, 1989.
24. Tenkhoff E., Verformungsmechanismen Textur und Anisotropie in Zirkonium und Zircaloy// Materialkundlich-Technische Reihe, 5, Gebruder Borntraeger, Berlin-Stuttgart, 1980.
25. Исаенкова М.Г., Перлович Ю.А. Роль двойникования в развитии текстуры деформации α -циркония.. ФММ. 1991. N5. С.87-92.
26. Yoji Mine, Shinji Ando, Hideki Tonda, Kazuki Takashima, Yakichi Higo// J. Japan Inst. Metals, 1998. Vol.62. N8. P.708-717.
27. Вишняков Я.Д., Бабарэко А.А., Владимиров С.А., Эгиз И.В. Теория образования текстур в металлах и сплавах. М.: Наука, 1979.
28. Клевцов Г.В., Перлович Ю.А., Фесенко В.А. К развитию рентгеновского метода идентификации изломов с испорченной поверхностью// Заводская лаборатория, 1993. N 8. С. 34-37.
29. Perlovich Yu., Isaenkova M., Goltzev V. Texture changes in the plastic deformation zone near the fracture surface of the Zr-1%Nb alloy sheet// JOURNAL DE PHYSIQUE IV, Colloque C6, supplement au Journal de Physique III. V.6. octobre 1996. P. 335-342.
30. Barraclough K.G., Beevers C.G. Some observation on the deformation characteristics of bulk polycrystalline zirconium hydrides. Part 1. The deformation and fractures of hydrides based on the δ -phase// J. Mater. Sci., 1969. Vol.4. P.518.
31. Warren M.R., Beevers C.J. The interrelation between deformation and crack nucleation in Zirconium containing hydride precipitates// J. nucl. Mater., 1968. Vol.26. P.273-285.