

Зависимость текстуры закаленного урана от характера нагрева и других параметров термообработки

В. Е. Иванов, В. Ф. Зеленский, А. П. Стукалов, А. В. Азаренко, Л. В. Тырина,
Я. И. Гордиенко, В. В. Кунченко

Приводятся данные металлофизического изучения структуры урана, подвергнутого фазовой перекристаллизации с различными скоростями нагрева и охлаждения. Показано, что в процессе такой термообработки в уране возможно образование текстуры, степень выраженности которой и распределение по сечению образца зависят от параметров термообработки (условий нагрева, времени выдержки в высокотемпературных фазах и т. д.), а также от предварительной механической обработки урана. Изменяя эти параметры в определенных пределах, можно существенно изменять степень выраженности и даже тип текстуры. Максимальная степень квазизотропии отмечается в образцах, находящихся в процессе термообработки под воздействием напряжений, создаваемых термическими градиентами или внешними силами, превышающими предел текучести урана. Обсуждаются вероятные механизмы возникновения текстуры в уране в процессе полиморфных превращений.

В настоящее время установлено, что радиационный рост урана в значительной степени определяется характером текстуры и степенью ее выраженности. Закалка урана из высокотемпературных фаз разрушает текстуру и в связи с этим является наиболее эффективным методом ограничения роста. Однако применяемые обычно способы закалки не обеспечивают получения полностью неупорядоченной структуры урана. Наблюдаемая в закаленном уране текстура типа [010] может способствовать радиационному росту. Коэффициент радиационного роста G_i для закаленного урана лежит в пределах 15—30 [1—3].

Вопрос о текстуре, возникающей в уране при термообработке, обсуждался неоднократно. В большинстве случаев ее принимают за следы не полностью разрушенной закалкой исходной текстуры [1—5]. Основание для такого утверждения — однотипность текстур до и после закалки. Предпринята попытка разрушить обнаруженную после однократной закалки текстуру путем проведения многократных закалок (до четырех раз). При этом наблюдалось измельчение блоков зерен и исчезновение текстуры, хотя последнее, по утверждению авторов работы [5], нуждается в дополнительной проверке. С другой стороны, показано [6], что многократная закалка из β -фазы урана промышленной

чистоты полностью не устраняет текстуру в α -уране.

В ряде исследований [20] отмечено, что уменьшение скорости охлаждения в процессе $\beta \rightarrow \alpha$ -превращения повышает изотропность урана, поэтому появление текстуры в закаленном уране иногда связывают с напряжениями, возникающими при переходе урана из β - в α -фазу, и квалифицируют как закалочную текстуру*.

Весьма противоречивые мнения существуют также относительно оптимальной термообработки урана. В работе [1] рекомендуется термообработка, предусматривающая нагрев урана до температур нижней области β -фазы и последующую закалку. Ханфордские предприятия [3] предлагают технологию, включающую быстрый нагрев урана до температур β -фазы (значительно выше температуры $\alpha \rightarrow \beta$ -превращения) и закалку. В одном исследовании [7] рекомендуется возможно более короткая выдержка урана в β -фазе перед закалкой, а другие авторы [8] полагают, что как температура, так и продолжительность выдержки при β -термообработке не имеют решающего значения, если последняя превышает время, необходимое для образования совершенно неупорядоченной структуры. Большинство авторов отдают предпочтение закалке из β -фазы [3, 9]; некоторые считают, что термообработка в β -фазе не имеет преимуществ перед термообработкой в γ -фазе [10].

Можно предположить, по-видимому, что в отдельных случаях эти разногласия объясняются различным химическим составом металла, размерами исследуемых образцов, а также другими технологическими параметрами.

Основная же причина несоответствия заключается не в этом. Структура металла во многом

* Авторы этих исследований, сотрудники Института теоретической и экспериментальной физики И. В. Батенин и Б. В. Шаров, впервые показали, что текстура, наблюдаемая в β -закаленном уране, не является остатками исходной текстуры. По их мнению, причина возникновения текстуры в закаленном уране — наличие большого температурного градиента при $\beta \rightarrow \alpha$ -превращении.

определяется кинетикой и механизмом фазовых превращений. Закономерности превращений, происходящих в уране, изучены недостаточно полно, и в связи с этим трудно оценить влияние многочисленных технологических параметров [11] на кинетику и механизм процесса. В настоящей работе предпринята попытка оценить влияние некоторых параметров термообработки на кинетику процесса фазовых превращений и структуру закаленного урана.

Микроструктура, текстура и коэффициент линейного термического расширения

В опытах был использован уран технической чистоты в виде проволоки, изготовленной по трем различным схемам: 1) прессование в α -фазе с последующей ротационной ковкой и калибровочное волочение при комнатной температуре; 2) прессование в α -фазе при высокой температуре и калибровочное волочение при температуре 150—200° С; 3) прессование в вакууме при температуре γ -фазы и волочение при высокой температуре в α -фазе.

характеризуются наиболее мелкозернистой структурой и четко выраженной текстурой [010]

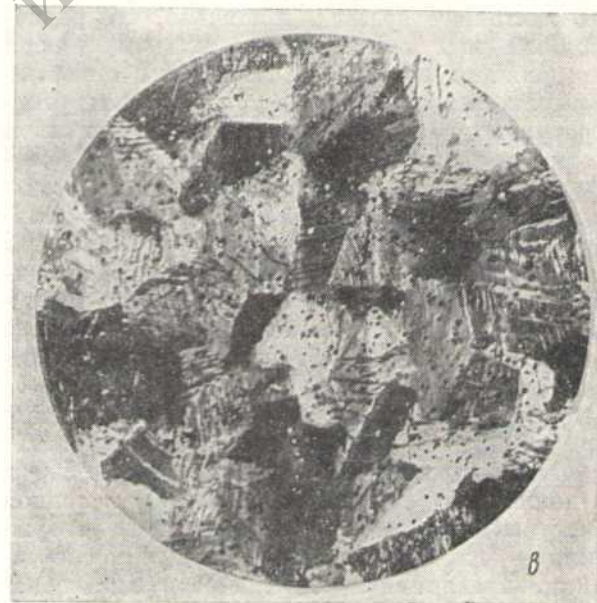
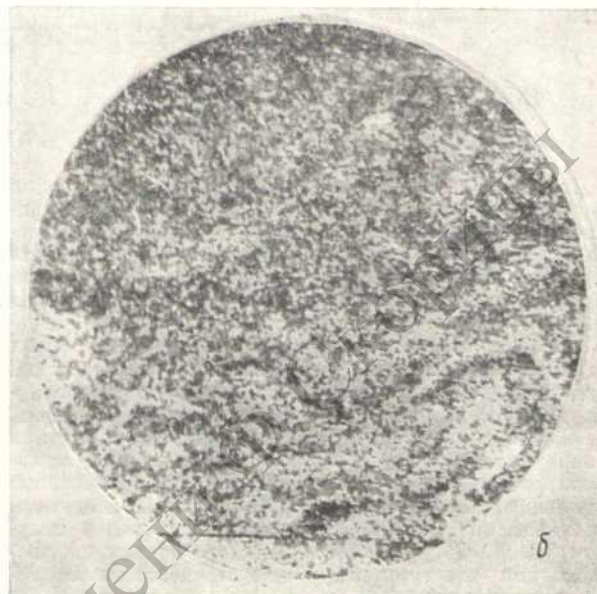
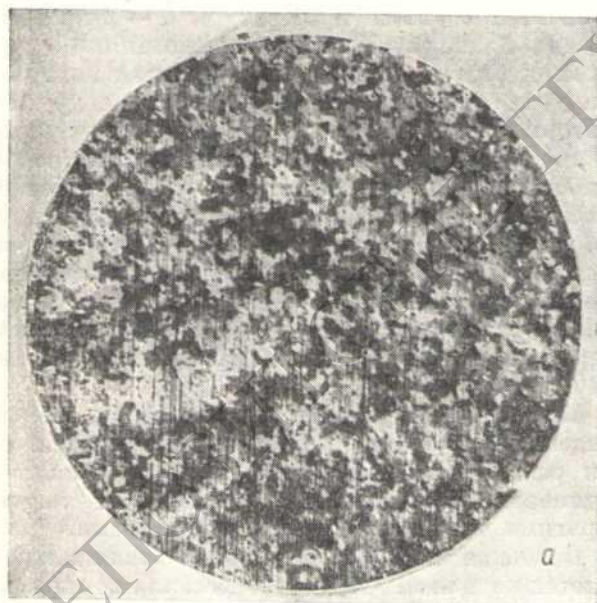


Рис. 1. Структура образцов урана, изготовленных по различным схемам (поляризованный свет, $\times 70$): а — по первой; б — по второй; в — по третьей.

Механическая обработка урана существенно влияет на его микроструктуру и текстуру. Образцы, приготовленные по первой схеме,

вдоль оси образцов (рис. 1, а). Средняя величина зерна равна примерно 10 мк, коэффициент линейного термического расширения, измерен-

ный в интервале 20—100° С, составляет $(5 \div 6) \cdot 10^{-6} 1/^\circ \text{C}^*$.

Образцы, приготовленные по второй схеме, обладают менее выраженной текстурой и более крупными зернами. Размер зерна не остается постоянным по сечению образца и по мере приближения к его поверхности уменьшается (см. рис. 1, б). Коэффициент линейного термического расширения равен $(7 \div 8) \cdot 10^{-6} 1/^\circ \text{C}$.

У образцов, приготовленных по третьей схеме, величина зерен составляет в среднем 200—300 мк (см. рис. 1, в). Степень текстуры

или волочения. Степень «строчечности» заметно повышается с понижением температуры деформирования.

Свойства урана, отожженного при температуре γ - и β -фаз с последующим медленным охлаждением

Отжиг образцов при температуре γ - или β -фазы и последующее медленное охлаждение приводят к значительному росту зерен. Образцы не имеют заметно выраженной текстуры. Коэффициент термического расширения образцов составляет $(15 \div 16) \cdot 10^{-6} 1/^\circ \text{C}$. Относительный рост образцов всех трех групп при циклической термообработке в α -фазе не превышает 1% за 300 циклов, однако поверхность образцов при этом становится сильно шероховатой. Коэффициент радиационного роста такого урана невелик ($G_t \approx 10$).

Свойства урана, закаленного охлаждением в воде

Закалка из γ -фазы. Уран, нагретый до температуры γ -фазы и охлажденный в воде, имеет относительно мелкокристаллическую структуру. Средняя величина зерен лежит в пределах 100—300 мк. Степень выраженности и тип текстуры закаленного урана зависят от времени выдержки образцов в γ -фазе и в известной мере

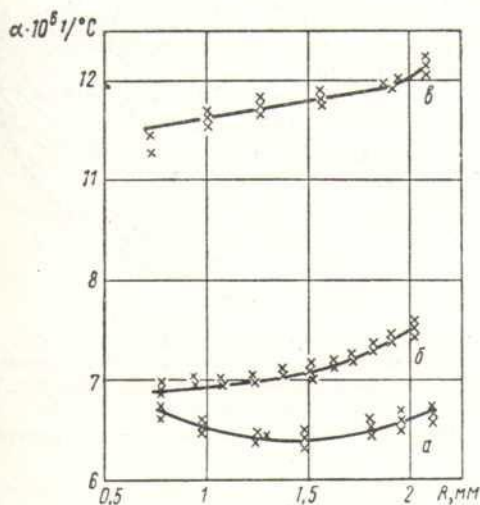


Рис. 2. Изменение значений среднего коэффициента линейного термического расширения по радиусу образцов, изготовленных по первой (а), второй (б) и третьей (в) схемам.

сравнительно невелика, коэффициент линейного термического расширения равен $(10 \div 12) \times 10^{-6} 1/^\circ \text{C}$.

На рис. 2 показано изменение коэффициента термического расширения по сечению урановых образцов, приготовленных по всем трем схемам. Заметна небольшая тенденция к уменьшению коэффициента линейного расширения по мере приближения к центру образца.

У образцов всех трех групп в матрице урана металлографически обнаруживается большое количество включений, главным образом монокарбида урана. При деформировании металла в α -фазе включения располагаются в виде «строчек», вытянутых вдоль направления прокатки

* В данной работе во всех случаях приводятся значения коэффициентов линейного термического расширения, измеренных вдоль оси образцов.

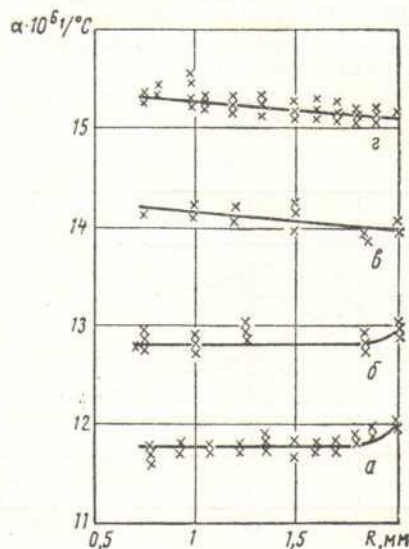


Рис. 3. Распределение среднего коэффициента термического расширения по радиусу закаленного из γ -фазы уранового образца, изготовленного по второй схеме. Выдержка при температуре γ -фазы, сек: а — 2000; б — 1000; в — 120; г — 10.

от способа предшествующей обработки металла. При малых выдержках в закаленном уране отмечается незначительная текстура с полюсами [001] и [010], параллельными оси образцов. Коэффициент термического расширения равен $15 \cdot 10^{-6} 1/^\circ\text{C}$. Увеличение времени выдержки в γ -фазе приводит к значительному увеличению текстуры [010] вдоль оси образца и постепенному снижению коэффициента термического расширения закаленного металла по всему сечению образца (рис. 3).

Закалка из β -фазы. Урановые стержни нагревали различными методами: в печах с внешним обогревом, в ваннах с жидкими металлами, в индукторе высокочастотного генератора. Изучение закаленного урана обнаружило ряд неизвестных ранее закономерностей.

В случае медленного нагрева (в печах с внешним обогревом) наибольшее разрушение текстуры достигается при сравнительно небольших выдержках урана и температуре β -фазы (рис. 4). Увеличение времени выдержки приводит к возрастанию текстуры [010] вдоль оси образца (рис. 5) и существенно снижает коэффициент термического расширения. Степень выраженности текстуры в закаленном металле зависит от способа предшествующей обработки.

Нагрев урана в ваннах с жидким металлом существенно меняет картину. В закаленном металле степень текстуры [010] весьма велика (рис. 6), а коэффициент термического расширения не зависит от времени выдержки металла в β -фазе. По-прежнему отмечается определенное влияние способа предшествующей обработки на степень текстуры в закаленном металле.

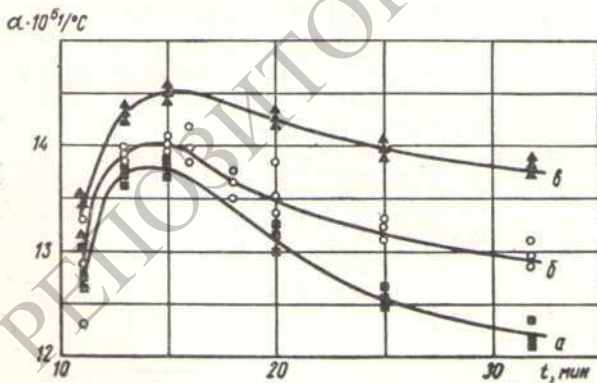


Рис. 4. Зависимость среднего коэффициента линейного термического расширения β -закаленного урана от времени выдержки в β -фазе перед закалкой (медленный нагрев). Образцы изготовлены по первой (а), второй (б) и третьей (в) схемам.

Индукционный нагрев способствует максимальному разрушению текстуры в уране (рис. 7). Коэффициент линейного термического

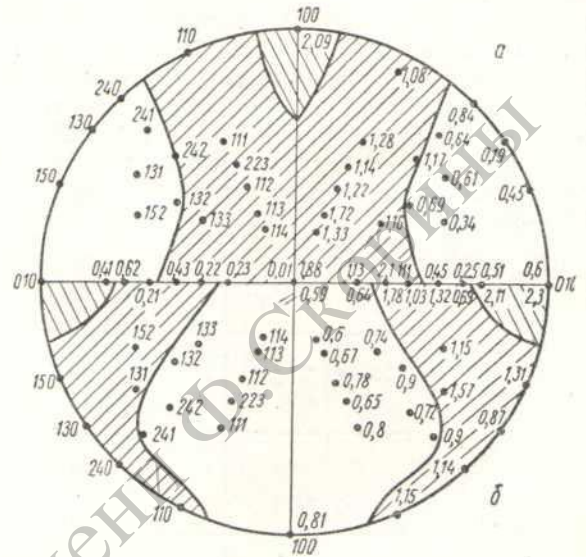


Рис. 5. Обратная полюсная фигура для образца урана, изготовленного по второй схеме и подвергнутого закалке из β -фазы (медленный нагрев, выдержка при 740°C в течение 15 мин):

а — для продольного сечения стержня; б — для поперечного сечения стержня.

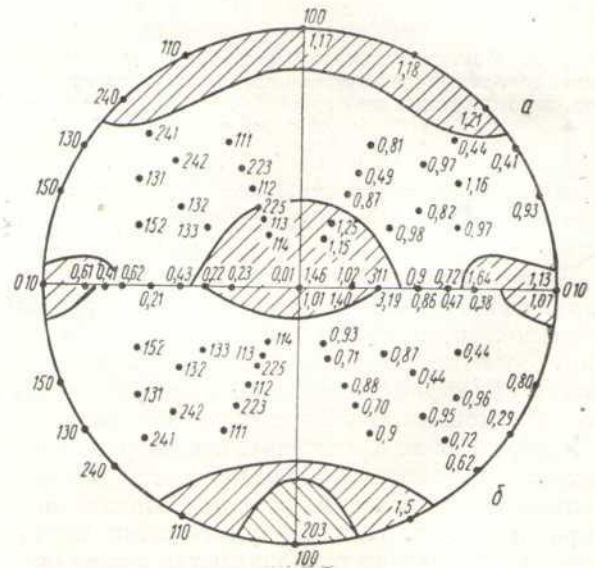


Рис. 6. Обратная полюсная фигура для образца урана, изготовленного по второй схеме и подвергнутого закалке из β -фазы (быстрый нагрев, выдержка при 740°C в течение 15 мин):

а — для продольного сечения стержня; б — для поперечного сечения стержня.

расширения составляет $(15 \div 15,7) \cdot 10^{-6} 1/^\circ\text{C}$. Рост урана при циклической термообработке в α -фазе незначителен и не превышает 1%

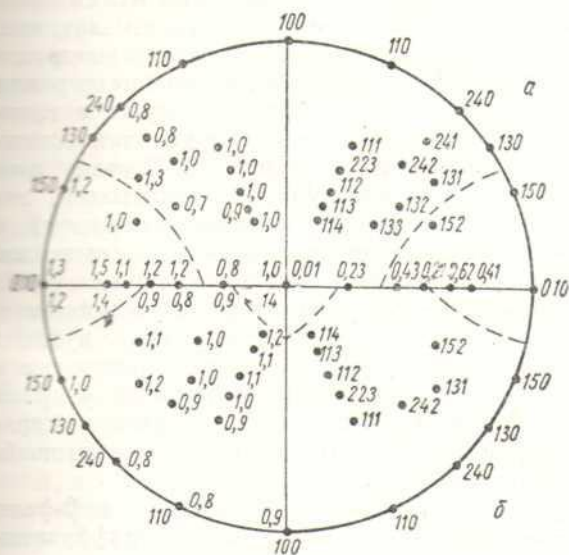


Рис. 7. Обратная полюсная фигура для образца урана, изготовленного по второй схеме и подвергнутого индукционной закалке из β -фазы: а — для продольного сечения стержня; б — для поперечного сечения стержня.

за 300 циклов. Однако и в этом случае в структуре образцов урана, изготовленных по различным технологическим схемам, наблюдаются отличия, обусловленные предшествующей обработкой. Для закаленного урана, предварительно обработанного по третьей схеме, коэффициенты линейного расширения составляют $(15,4 \div 15,7) \cdot 10^{-6} 1/^\circ\text{C}$; для урана, предварительно обработанного по первой схеме, эта величина находится в пределах $(14,9 \div 15,3) \cdot 10^{-6} 1/^\circ\text{C}$.

Изучение распределения коэффициента линейного термического расширения по сечению закаленных урановых стержней обнаруживает ряд особенностей. В образцах, термообработка которых включала медленный нагрев и длительную выдержку в β -фазе, наблюдается неравномерное распределение текстуры по сечению стержней. В слоях металла, прилегающих к боковой поверхности, текстура [010] выражена наиболее сильно, значение коэффициента термического расширения минимально. По мере приближения к центру образцов степень изотропности урана возрастает (рис. 8, кривая а). В образцах, которые нагревали в ваннах с жидким металлом, картина в общем повторяется, однако степень текстуры [010]

в приповерхностных слоях металла значительно меньше, чем в первом случае (см. рис. 8, кривая б). В результате индукционного нагрева и последующей закалки в металле наблюдается практически равномерное распределение коэффициента линейного термического рас-

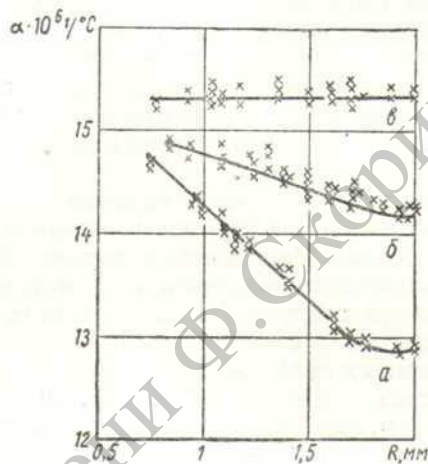


Рис. 8. Распределение значений среднего коэффициента линейного термического расширения по радиусу образцов, изготовленных по второй схеме и закаленных из β -фазы:

а — медленный нагрев; б — нагрев в ваннах с жидким металлом; в — индукционный нагрев.

ширения по сечению образцов (см. рис. 8, кривая в). Среднее значение коэффициента линейного расширения близко к его значению для изотропного металла.

Обсуждение результатов

Описанные опыты свидетельствуют о том, что текстура закаленного урана определяется главным образом параметрами термообработки металла: условиями нагрева и температурой, от которой проводится закалка, выдержкой при данной температуре, условиями охлаждения. На степень выраженности текстуры существенно влияет предшествующая закалке механическая обработка урана в α -фазе, точнее, температура, при которой проводится окончательная деформация. При снижении температуры деформирования металла степень текстуры в закаленном уране заметно повышается.

Можно было бы предположить, что текстура, наблюдаемая в закаленном уране, является остаточной, не полностью разрушенной исходной текстурой. Так, известно [12], что чем ниже температура деформирования урана в α -фазе, тем более четко выражена текстура [010].

Опыт показывает, однако, что подобное предположение неверно. Степень выраженности текстуры в закаленном уране не определяется степенью текстуры в урановом образце до его закалки, о чем свидетельствует следующий опыт. Образцы, приготовленные по второй схеме, и образцы этого же урана, предварительно подвергнутые индукционной β -закалке и не имеющие текстуры, подвергали β -обработке, включающей медленный нагрев, выдержку в течение 15 мин и закалку. После этого обнаруживалась текстура [010], степень которой в обоих случаях оказалась одинаковой.

В другой серии опытов один и тот же образец последовательно подвергался различным видам термообработки. Результаты измерений (рис. 9) также свидетельствует о том, что текстура в закаленном уране определяется условиями термообработки.

Наконец, из простого сопоставления дилатометрических кривых до (см. рис. 2) и после закалки (см. рис. 8, кривая *a*) также следует, что текстура закаленного урана не является остаточной, так как характер ее распределения в первом и во втором случаях совершенно различен.

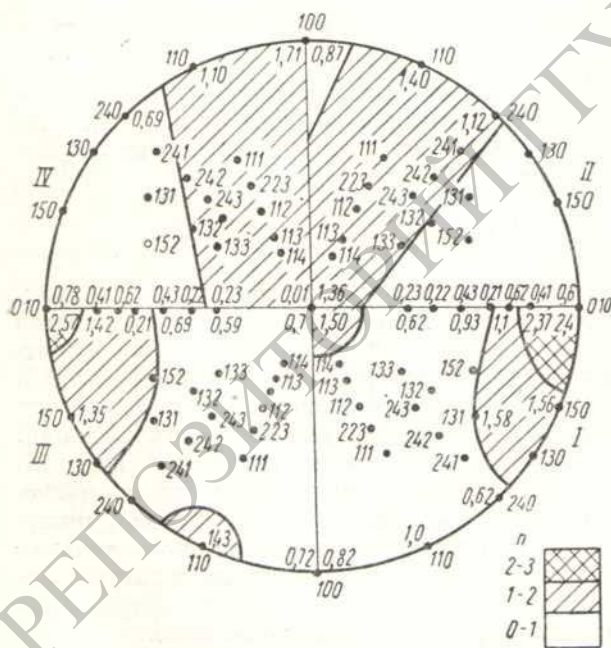


Рис. 9. Обратные полюсные фигуры для уранового образца, изготовленного по второй схеме и подвергнутого β -закалке с различными скоростями нагрева в следующей последовательности:

I, III — медленный нагрев, выдержка в течение 15 мин в β -фазе, закалка; II, IV — индукционный нагрев, закалка.

Можно было бы предположить, что наличие текстуры в поверхностных слоях металла обусловлено воздействием закалочных напряжений, возникающих при быстром охлаждении урана из β -фазы. Однако опыт показывает, что, изменяя условия нагрева и время выдержки металла в β -фазе, можно в достаточно широких пределах изменять степень текстуры в закаленном металле, в то время как условия охлаждения остаются неизменными. Поэтому текстура в закаленном уране, по-видимому, является результатом упорядоченной перестройки решетки металла при $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ -превращении.

По существующим представлениям [3, 6, 13—16], $\beta \rightarrow \alpha$ -превращение в техническом уране может осуществляться двумя путями: обычным путем диффузионного зарождения и роста кристаллов α -фазы в матрице β -урана («диффузионный» механизм) и путем превращения, подобного мартенситному («сдвиговый» механизм).

При медленном охлаждении урана из β -фазы $\beta \rightarrow \alpha$ -превращение происходит диффузионным путем. Зарождение и рост кристаллов новой фазы проходят при температурах, превышающих порог рекристаллизации, и развиваются главным образом за счет некогерентного роста зародышей α -фазы в матрице β -урана. Уже отмечалось, что структура урана, охлажденного из β -фазы с малыми скоростями, близка к изотропной, однако крупнозерниста. В случае быстрого охлаждения («закалки») превращение в уране осуществляется преимущественно мартенситным путем; при этом следует ожидать строгое кристаллогеометрическое соответствие структур обеих фаз. По-видимому, текстура, наблюдаемая в закаленном уране, во многом определяется текстурой высокотемпературных фаз и, в частности, текстурой β -фазы.

Непосредственное исследование процессов формирования структуры β -урана представляет большие экспериментальные трудности. Однако изучение зависимости структуры и текстуры закаленного урана от различных параметров термообработки позволит выделить факторы, оказывающие наиболее существенное влияние на кинетику $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ -превращения.

Одним из условий, способствующих развитию текстуры в β -фазе при $\alpha \rightarrow \beta$ -превращении, может быть наличие в уране строчных включений и нерастворимых примесей, которые, как известно, могут существенно облегчать процесс кристаллизации новой фазы [17]. Поэтому степень текстуры кристаллов в закаленном уране должна возрастать с повышением

упорядоченности включений в структуре металла, что подтверждается данными опытов, согласно которым в уране с беспорядочным расположением включений (первая схема) степень текстуры [010], наблюдаемой в закаленном металле, минимальна. Следует заметить, что многократная закалка образцов из β -фазы не нарушает строчности в распределении включений, поэтому текстура закаленного урана после многократной закалки практически такая же, как и после однократной.

Дефекты в структуре урана — микротрещины, поры и т. д., — неизбежно возникающие в металле при его деформировании (особенно в низкотемпературной области α -фазы), также могут существенно влиять на ориентировку кристаллов β -фазы при $\alpha \rightarrow \beta$ -превращении. Полагают [18], что на границе металл — вакуум могут возникать кристаллы с преимущественной ориентировкой по отношению к этой границе, что обусловлено резкой анизотропией решеток в α - и β -фазах. Поскольку поверхностные энергии разных граней кристаллической решетки у этих фаз значительно различаются, то при фазовых переходах следует ожидать появления на поверхности образца зародышей новой фазы с ориентировкой, соответствующей минимуму свободной энергии. Возможно, этим в определенной мере объясняется появление текстуры [010] в приповерхностных слоях металла, закаленного из β -фазы (см. рис. 8, кривая a).

Изменение условий нагрева — увеличение скорости нагрева с созданием температурного градиента по сечению образца — в значительной степени уменьшает степень выраженности этой текстуры, а при определенных условиях приводит к полному ее устранению. Этот эффект обусловлен влиянием термических напряжений, вызванных неравномерностью нагрева образца. Известно, что деформация металла, обусловленная внешними силами или термическими напряжениями, может существенно влиять на процесс фазовых превращений [19]. Обычно пластическая деформация металла ускоряет фазовые превращения, поскольку решетка кристаллов материнской фазы искажена около плоскостей сдвига, и в этих местах с повышенной энергией процесс зарождения и роста кристаллов новой фазы ускоряется. Кроме того, при напряжениях, превышающих предел текучести металла, может происходить «залечивание» пор и микротрещин, способствующих ориентированному зарождению кристаллов.

Для выяснения влияния на структуру закаленного урана внешнего давления в процессе

$\alpha \rightarrow \beta$ -превращения в ряде опытов во время нагрева прикладывались нагрузки, превышающие предел текучести урана в температурной области $\alpha \rightarrow \beta$ -превращения. Результаты показывают, что структура закаленного урана близка к изотропной даже при медленном нагреве до температур β -фазы.

На основании изложенного можно сделать следующие выводы:

1. Текстура закаленного урана зависит от характера термообработки и в первую очередь от условий нагрева и времени выдержки в высокотемпературных фазах.

2. Максимальная степень разрушения текстуры отмечается в образцах, находившихся в процессе термообработки под воздействием напряжений, создаваемых термическими градиентами или внешними усилиями.

3. При малых и умеренных скоростях нагрева степень текстуры закаленного урана существенно зависит от технологии изготовления урана и времени выдержки его в β -фазе перед закалкой.

Поступила в Редакцию 30/V 1963 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Фут. В кн. «Металлургия ядерной энергетики и действие облучения на материалы». Доклады иностранных ученых на Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1955). М., Metallurgizdat, 1956, стр. 146.
2. Киттель, Пейн. В кн. «Труды Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии». Избр. докл. иностр. ученых. Т. 6. М., Атомиздат, 1959, стр. 309.
3. Металловедение реакторных материалов. Обзоры Института им. Бэттеля. Кн. 1. М., Госатомиздат, 1962.
4. А. С. Займовский, В. В. Калашников, И. С. Головин. Тепловыделяющие элементы атомных реакторов. М., Госатомиздат, 1962.
5. Стор, Энгляндер, Готрон. См. [2], стр. 515.
6. В. Butcher, A. Holden. Metallurgy and Fuels, 2, 424 (1959).
7. Пейн, Киттель. См. [1], стр. 659.
8. Ч. Харрингтон, А. Рюэле. Технология производства урана. М., Госатомиздат, 1961.
9. А. С. Займовский и др. В кн. «Труды Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии». Докл. сов. ученых. Т. 3. М., Атомиздат, 1959, стр. 573.
10. Б. Копельман. Материалы для ядерных реакторов. М., Госатомиздат, 1962, стр. 328.
11. П. И. Христенко и др. См. [9], стр. 655.
12. Г. Я. Сергеев, В. В. Титова, К. А. Борисов. Металловедение урана и некоторых реакторных материалов. М., Атомиздат, 1960, стр. 62.