

РЕНТГЕНОДИФРАКЦИОННЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ДИСЛОКАЦИОННОЙ СТРУКТУРЫ УРАНОВЫХ ОБРАЗЦОВ, СОХРАНЕННЫХ ПОСЛЕ УДАРНО-ВОЛНОВОГО НАГРУЖЕНИЯ

И. В. Артамонов, А. Е. Шестаков

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ им. акад. Е. И. Забабахина», г. Снежинск Челябинской обл.

Введение

В настоящее время не вызывает сомнений, что механические характеристики реальных кристаллических материалов определяются в первую очередь наличием в них структурных дефектов разного типа, перераспределение и взаимодействие которых обуславливают особенности поведения данного материала под нагрузкой.

Исследование процессов пластической деформации, зарождения и развития разрушений в уране представляет собой сложную научно-техническую задачу. Одним из наиболее полных и широко применяемых методов исследования особенностей высокоскоростного деформирования и разрушения материалов являются эксперименты по ударно-волновому нагружению (УВН), в частности, высокоскоростной взрывной деформации [1], которые дают возможность получать сведения о наиболее фундаментальных прочностных свойствах материалов.

Результаты воздействия ударных волн на материал наиболее легко и удобно анализировать, изучая различными методами структуру и свойства сохраненных после УВН образцов. Дифракция рентгеновского излучения позволяет получить данные о кристаллической решетке и зафиксировать изменения, происходящие на таком масштабном уровне. Одним из параметров микроструктуры, претерпевающим изменение, является плотность хаотически распределенных дислокаций [2]. Существуют различные способы исследования дислокационной структуры. Наилучшим из них является просвечивающая электронная микроскопия (ПЭМ), позволяющая непосредственно наблюдать дислокации и характер их распределения. Но у данной методики есть несколько недостатков. Во-первых, сложность приготовления препаратов для исследования. Во-вторых, очень маленький объем вещества, подвергающийся исследованию. Все это приводит к большим затратам времени для получения результатов, характеризующих материал.

Метод дифракции рентгеновского излучения, наоборот, является интегральным, характеризуя достаточно большой объем вещества. Приготовление препарата существенно проще, чем для ПЭМ. Но этот метод не является прямым. Величина плотности хаотически распределенных дислокаций вычисляется из измеряемой величины – ширины дифракционных максимумов. Комбинация этих двух методов, дифракции рентге-

новского излучения, как основного метода, и ПЭМ, как способа градуировки, дает хороший результат.

Исследования дислокационной структуры направлены на построение физической теории пластичности, связывающей пластические свойства материала с его реальной структурой и описывающей изменения реальной структуры материала в процессе пластической деформации.

Исследование проводилось с целью изучения плотности хаотически распределенных дислокаций в материале после УВН, которая изменяется при проведении ударно-волновых экспериментов, а также для получения более детальной информации, характеризующей структуру вещества, в результате высокоскоростной деформации. Для выявления изменений величины плотности дислокаций, вызванных УВН, проводилось сравнение с образцом-свидетелем, не подвергавшимся воздействию.

В настоящей работе представлены результаты исследований дислокационной структуры трех толстостенных оболочек (оболочки № 1, 2 и 3) из нелегированного урана, подвергнутых УВН различной интенсивности путем подрыва слоев взрывчатого вещества на их наружной поверхности. Оболочка № 2 претерпела самое интенсивное нагружение, оболочка № 3 – менее интенсивное, а оболочка № 1 претерпела самое легкое нагружение из всех исследуемых объектов. Методом рентгеноструктурного анализа проводилось изучение диаметрального сечения оболочек, с целью получения данных о плотности хаотически распределенных дислокаций в материале образцов после УВН и особенностях, связанных с высокоскоростной деформацией в сферических волнах напряжений.

Методика

Известно, что линии на дифрактограммах материала после УВН уширены [1, 2, 8]. К увеличению ширины линий могут приводить микроискажения кристаллической решетки, вызванные накоплением хаотически распределенных дислокаций. При этом связь плотности дислокаций (ρ) и величины микроискажений кристаллической решетки (ε) может быть описана выражением $\rho = K\varepsilon^2$ [6].

Другой причиной уширения может быть измельчение областей когерентного рассеяния (ОКР) до величин $<0,1$ мкм [5]. Анализ угловой зависимости уширения позволяет определить степень влияния на него каждого из этих факторов [3].

Для определения величины микроискажений кристаллической решетки мы использовали метод построения Вильямсона – Холла, основанный на соотношении

$$\beta^2 = \left(\frac{\lambda}{D \cos(\theta)} \right)^2 + (4\epsilon \operatorname{tg}(\theta))^2,$$

где β – физическое уширение дифракционного максимума в пространстве 2θ в радианах; λ – длина волны используемого излучения в метрах; D – размер областей когерентного рассеяния (ОКР) в метрах; θ – угол дифракции; ϵ – величина микроискажений кристаллической решетки в долях.

Умножив обе части выражения на $\cos^2(\theta)$, получим линейную зависимость $\beta^2 \cos^2(\theta)$ от $\sin^2(\theta)$

$$\beta^2 \cos^2(\theta) = \frac{\lambda^2}{D^2} + 16\epsilon \sin^2(\theta).$$

Имея экспериментальный набор пар значений $\beta_i^2 \cos^2(\theta_i)$ и $\sin^2(\theta_i)$, можно методом наименьших квадратов найти $\frac{\lambda^2}{D^2}$ и 16ϵ , как коэффициенты линейной регрессии, из которых определяются D – размер ОКР и ϵ – величина микроискажений кристаллической решетки.

Методика определения величины микроискажений кристаллической решетки подробно изложена и успешно проверена на урановых образцах после механического шлифования [8].

Для вычисления плотности дислокаций необходимо иметь коэффициент K , связывающий ρ и ϵ^2 . Для его нахождения был проведен ряд измерений величины микроискажений кристаллической решетки урана на образцах, для которых была известна плотность дислокаций, определенная при помощи ПЭМ [7]. На рис. 1 представлены экспериментальные данные и экстраполяционная прямая. По оси абсцисс отложен квадрат величины микроискажений кристаллической решетки, выраженный в процентах. Коэффициент, связывающий плотность дислокаций и квадрат величины микроискажений кристаллической решетки, был найден по методу наименьших квадратов, $K = (90 \pm 5) \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$. Получаемые в данной работе значения величины микроискажений кристаллической решетки пересчитывались в плотность дислокаций с использованием данного значения коэффициента.

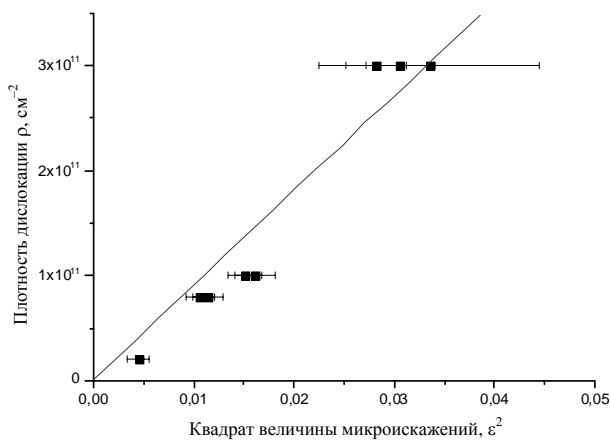


Рис. 1. Экспериментальные данные измерения плотности дислокаций при помощи ПЭМ и величины микроискажений кристаллической решетки по уширению дифракционных максимумов по предлагаемой методике. Сплошная линия – линейная экстраполяция

Образцы

Все исследованные в работе образцы были изготовлены из обедненного крупнокристаллического урана технической чистоты. Основной примесью являлся углерод, присутствовавший в виде карбидов [8].

В настоящей работе представлены результаты исследования дислокационной структуры трех толстостенных оболочек, подвергнутых УВН различной интенсивности в сферической геометрии, путем подрыва взрывчатого вещества на их наружной поверхности. Размеры исследуемых оболочек: наружный диаметр ~ 45 мм, внутренний ~ 15 мм. Оболочка № 2 претерпела самое интенсивное нагружение, оболочка № 3 – менее интенсивное, а оболочка № 1 претерпела самое легкое нагружение из всех исследуемых объектов. Условия нагружения выбирали таким образом, чтобы в первом случае (оболочка № 2) реализовать все стадии УВН и наблюдать возможные фазовые превращения в уране, в т. ч. переход в жидкое состояние, во втором случае (оболочка № 1) обеспечить достаточно большую деформацию, но не допустить разогрева до температуры плавления, а в третьем случае (оболочка № 3) реализовать некоторое промежуточное состояние между первыми двумя случаями.

Сферические оболочки после УВН разрезали на две части по меридиану. После, из одной половины двумя резами дисковой пилы вырезали сегмент. Из получившегося сегмента вырезали брусочек (рис. 2) с размерами $\sim 5 \times 5$ мм. Северную часть брусочка порезали на поперечные образцы, характеризующие материал сохраненной оболочки на разном расстоянии от поверхности. Измерения толщины отрезанных образцов и оставшейся части позволили потом восстановить координату исследуемого образца относительно поверхности сохраненной оболочки.

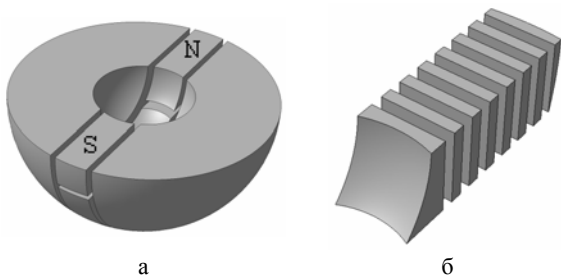


Рис. 2. Схема разрезки оболочки. а – вырезка фрагментов из северной (N) и южной (S) частей; б – вырезка поперечных образцов из северного фрагмента

Перед проведением рентгенографии образцы подвергались электрохимической полировке для удаления наклепанного при резке слоя. С каждой стороны снимали приблизительно по 100 мкм. Толщина удаленного материала определялась взвешиванием.

Модельные образцы имели исходную толщину ~4 мм. Их подвергли предварительному отжигу в вакуумированных отпаянных кварцевых ампулах при температуре 1000 °С в течение 70 мин с охлаждением на воздухе. После отжига часть образцов подвергли 5 и 20 % деформации на прессе со скоростями $\sim 10^{-3} \text{ с}^{-1}$. Часть образцов после прессования прокатывали на валках до 60 % деформации. Степень деформации контролировали измерением толщины. После деформации образцы были запаяны в вакуумированные ампулы по четыре штуки и отжигались при температурах 200, 400, 600, 720 и 850 °С в течение 30-ти минут с охлаждением на воздухе.

Перед проведением рентгенографии с каждого образца механически на шкурках снимали приблизительно 1 мм и 100 мкм электрохимическим травлением. Количество удаленного материала определялось взвешиванием.

Результаты и их обсуждение

Для урана, как и для многих других металлов, увеличение степени деформации приводит к увеличению плотности хаотически распределенных дислокаций. На рис. 3 представлена полученная нами зависимость. После ~30 % деформации наступает насыщение. Плотность дислокаций практически не растет с дальнейшим увеличением степени деформации.

Отжиг приводит к уменьшению плотности дислокаций. Чем выше температура отжига, тем ниже плотность дислокаций после его завершения. Отжиг в альфа-фазе при температуре 600 °С приводит к уменьшению плотности дислокаций до уровня, характерного для исходного состояния материала. Отжиги при 720 и 850 °С в бета- и гамма-фазе, соответственно, не приводят к дальнейшему изменению плотности дислокаций. На рис. 4 представлены результаты измерения плотности дислокаций в уране, деформированном на 20 %, после отжигов при различных температурах.

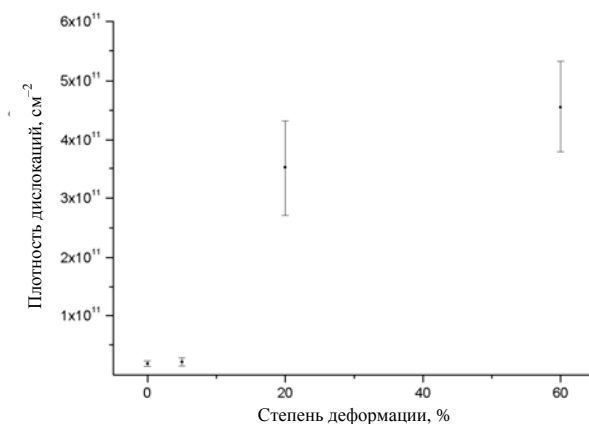


Рис. 3. Зависимость плотности дислокаций в уране от степени деформации при комнатной температуре и скорости деформации $\sim 10^{-3} \text{ с}^{-1}$

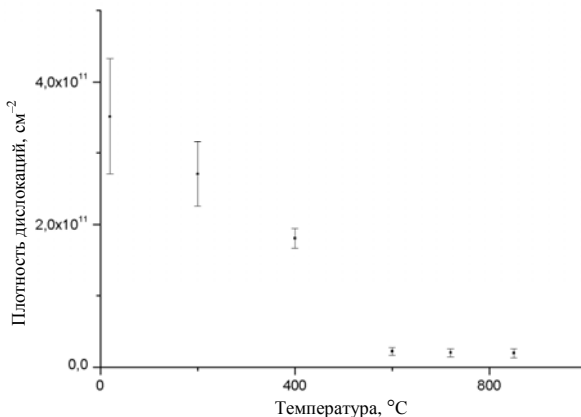


Рис. 4. Зависимость плотности дислокаций в уране, деформированном на 20 %, от температуры после деформационного отжига

Подобные зависимости от температуры получены и при отжиге урановых образцов после деформации на 60 и 5 %. Вся совокупность данных об изменении плотности дислокаций при деформации и последующих отжиге хорошо согласуется с литературными данными по измерению микротвердости [9].

Исследование материала сохраненных оболочек показало, что плотность дислокаций возросла по сравнению с исходным состоянием. Но она не одинакова по сечению оболочек. На рис. 5, 6 и 8 приведены полученные нами зависимости плотности дислокаций от расстояния от поверхности. Пунктирной линией показана величина плотности дислокаций в исходном состоянии, сплошными линиями – погрешность этого значения. Квадратики – полученные значения и погрешность. Вертикальными линиями отмечены координаты границ зон, по результатам световой микроскопии, выполненной в меридиональном сечении сохраненной оболочки.

Вблизи поверхности оболочки плотность дислокаций относительно исходного состояния возрастает при УВН гораздо больше, чем во внутренних слоях. Подобный результат наблюдался для всех трех

исследуемых оболочек. При различных режимах нагружения формируются отличающиеся распределения величины плотности дислокаций. Однако, сравнение полученных нами данных с результатами исследования меридионального сечения оболочек при помощи световой микроскопии (рис. 7) [7] выявило хорошее качественное совпадение. На графиках, приведенных на рис. 5, 6 и 8, отмечены границы зон, выявленных с помощью световой микроскопии. Величина плотности дислокаций постоянна внутри каждой зоны и изменяется скачкообразно при пересечении границы, разделяющей зоны.

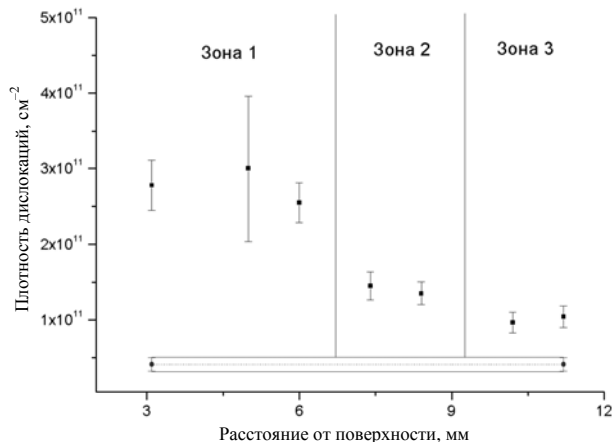


Рис. 5. Зависимость плотности дислокаций от расстояния от поверхности для первой оболочки

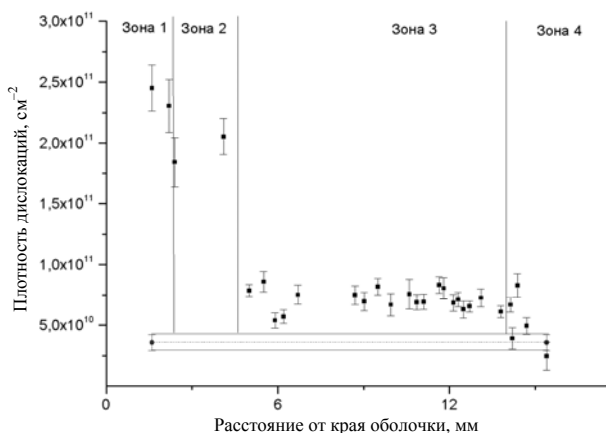


Рис. 6. Зависимость плотности дислокаций от расстояния от поверхности для второй оболочки

Отдельно нужно отметить, что крайние точки во второй зоне оболочки № 3 скорее должны быть отнесены к соседним зонам (рис. 8). Это, вероятно, связано с тем, что границы зон определены по данным световой микроскопии и определялись в меридиональном сечении. А плоскость образцов перпендикулярна меридиональному сечению. Как видно на рис. 9, одна часть образца (первый случай), причем малая, может находиться во второй зоне, а большая часть, от которой получаем основную информа-

цию, – в первой зоне. Во втором случае основная часть образца может находиться в третьей зоне, а его торец, из за неправильной формы границ зон, – оказаться во второй.

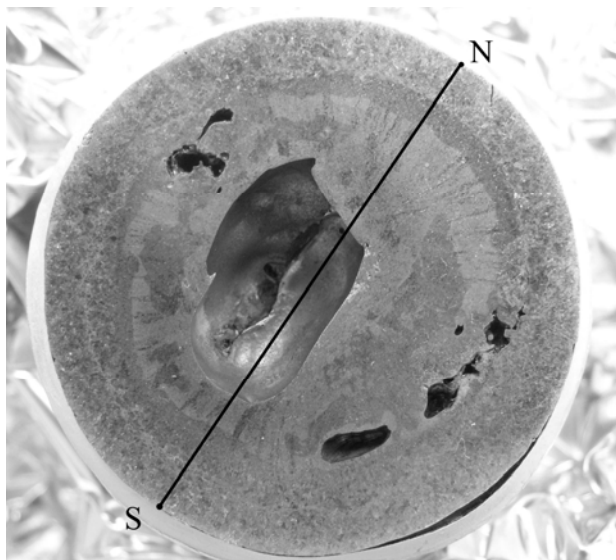


Рис. 7. Зональное строение второй оболочки

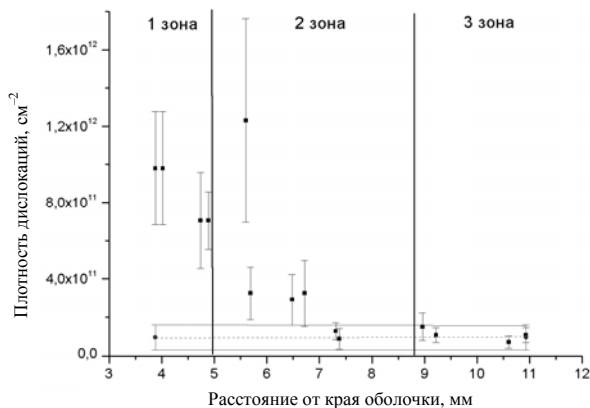


Рис. 8. Зависимость плотности дислокаций от расстояния от поверхности для третьей оболочки

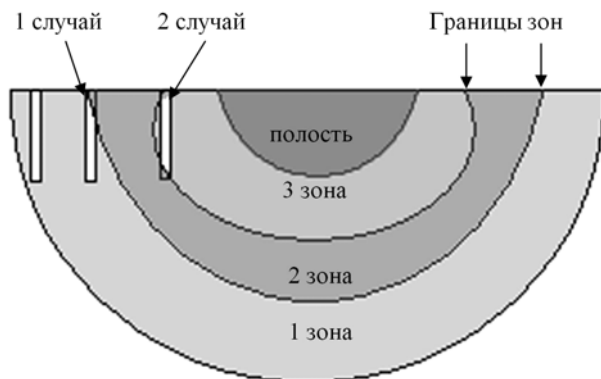


Рис. 9. Возможное положение образцов в зональной структуре оболочки № 3

Анализ структуры материала различных зон, выявленной при помощи световой микроскопии, в сопоставлении с данными расчетов позволил сделать вывод о том, что в первой (наружной зоне) оболочек шла высокоскоростная деформация в альфа-фазе, во второй зоне происходила рекристаллизация, в третьей зоне происходило фазовое превращение, в четвертой зоне – плавление урана [7].

Полученное нами значение плотности дислокаций, характерное для материала первой зоны, $\sim 2,5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-1}$. Такая плотность дислокаций соответствует деформации с низкой скоростью до величины $\sim 30\%$. Расчет дает меньшую величину, что свидетельствует об особенностях накопления дислокаций при деформации с высокими скоростями.

Высокая плотность дислокаций $\sim 2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-1}$ во второй зоне тоже неожиданна, поскольку рекристаллизация при обычных скоростях нагрева, длительной выдержке и медленном охлаждении приводит к снижению плотности дислокаций до исходного уровня.

Плотность дислокаций в третьей зоне $\sim 1 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-1}$, где происходили фазовые превращения, тоже выше, чем в модельных образцах, которые медленно охлаждались после термообработки. Вероятно, скорость охлаждения оказывает влияние на величину остаточной плотности дислокаций.

Выводы

- Предложен и методически опробован рентгенодифракционный способ измерения плотности хаотически распределенных дислокаций в материалах с кристаллической решеткой низкой симметрии (уран).
- Выполнены измерения плотности дислокаций по сечению двух сферических оболочек из урана технической чистоты, сохраненных после УВН различной интенсивности. Показано различие в их распределении.
- Установлено согласие зависимости величины плотности дислокаций от координаты и зонального строения сохраненных оболочек, выявленного при помощи световой микроскопии.
- Получены зависимости плотности дислокаций в уране после деформации при комнатной температуре до величины 60 % и последующих отжигов в альфа-, бета- и гамма-фазах при температурах до 850 °С.
- Сопоставление результатов измерения плотности дислокаций в сохраненных оболочках с данными,

полученными на модельных образцах после деформаций с низкими скоростями ($\sim 10^{-3} \text{ с}^{-1}$) и последующих отжигов, указывает на существование особенностей накопления дислокаций при деформации с высокими скоростями, что побуждает продолжить систематическое исследование модельных образцов после высокоскоростной деформации и закалок с разными скоростями от различных температур.

Литература

1. Ударные волны и явления высокоскоростной деформации металлов / Под ред. М. А. Мейерса, Л. Е. Мурра. М.: Металлургия, 1984.
2. Эпштейн Г. Н. Структура металлов, деформированных взрывом. М.: Металлургия, 1980.
3. Козлов Е. А. и др. К вопросу о метастабильности, неполноте протекания α - ϵ -фазового превращения в нелегированном железе при пороговых импульсах нагрузки. Особенности деформационного поведения и структуры армко-железа // ФММ. 2005. Т. 99, № 3. С. 94.
4. Тейлор А. Рентгеновская металлография. М.: Металлургия, 1965.
5. Williamson G. K., Hall W. M. Acta Metall. 1953. Vol. 1. P. 22–31.
6. Уманский Я. С. и др. Кристаллография, рентгенография и электронная микроскопия. М.: Металлургия, 1982.
7. Кривоглаз М. А. Теория рассеяния рентгеновских лучей и тепловых нейтронов реальными кристаллами. М.: Наука, 1967.
8. Сагарадзе В. В. и др. Отчет о НИР, договор № 31/06 от 14.03.2006. ИФМ УрО РАН. Исследование структуры материала в исходном состоянии и после высокоскоростной взрывной деформации.
9. Шестаков А. Е., Козлов Е. А., Артамонов И. В. и др. Результаты применения методики Вильямсона – Холла к анализу уширения дифракционных максимумов нелегированного обедненного крупнокристаллического урана после ударно-волнового нагружения в диапазоне 20–50 ГПа: Докл. на IX Забабахинских научных чтениях. Снежинск, 2007. <http://www.vniitf.ru/rig/konfer/9zst/s5/5-c19.pdf>
10. Сокурский Ю. Н. и др. Уран и его сплавы. М.: Атомиздат, 1971.