

CSA	
RES	
Nº	AÑO
1	1980

04.80.27

327

## DETERMINACION DE TEXTURA CRISTALOGRAFICA MEDIANTE DIFRACCION DE RAYOS X

R.J. ACUÑA, J.D. HERMIDA y M. ORTIZ ALBUIXECH

C.N.E.A.

En un material policristalino cada grano tiene, en general, una orientación cristalográfica distinta. Estas orientaciones pueden estar distribuidas al azar o estar agrupadas preferencialmente alrededor de alguna dirección, referida a un sistema de coordenadas fijo a la muestra. En este último caso se dice que el material posee textura cristalográfica (1) (2).

La orientación de cada grano en un material policristalino se puede especificar por la orientación de sus planos cristalinicos y esta, a su vez, se puede determinar por técnicas de difracción. Es claro que en la práctica no se determina individualmente la orientación de cada uno de los cristales que componen una muestra, sino que se promedian los efectos de numerosos granos simultáneamente.

La importancia tecnológica de las texturas se debe a que ésta puede modificar sensiblemente las propiedades mecánicas de un material. En el caso de las aleaciones de circonio y en particular el Zircaloy-4, aleación que se utiliza en la fabricación de tubos para elementos combustibles nucleares, la textura cristalográfica se desarrolla cuando el material es sometido a los procesos de fabricación.

En este informe se describe el procedimiento de determinación de textura cristalográfica de tubos de Zircaloy mediante difracción de Rayos X y se presentan los primeros resultados obtenidos durante la puesta a punto del método.

### II. PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

#### II. 1. FIGURA DE POLOS

La textura de un material en una dirección determinada se expresa mediante el coeficiente de textura TC. Este es igual al cociente entre el número de planos cristalinicos de índices de Miller (hkl) normales a aquella dirección y el número de planos de iguales índices de una muestra de referencia, que no posee orientaciones preferenciales (3).

TC igual a la unidad significa que en la dirección correspondiente no hay orientaciones preferenciales. Valores mayores de TC corresponden a una acumulación de planos cuya normal coincide con esa dirección y recíprocamente valores menores que la unidad indican una reducción con respecto a la muestra de referencia.

La intensidad difractada correspondiente a una reflexión (hkl) es directamente proporcional al número de planos irradiados. Consecuentemente, los TC se calculan mediante un cociente de intensidades.

Para tener un conocimiento completo de la distribución de orientaciones de una cierta familia (hkl) es necesario medir los TC en todas las direcciones posibles. Posteriormente los resultados grafican en una proyección estereográfica y se trazan las curvas de nivel o zonas de igual intensidad. La construcción resultante se denomina figura de polos, figura 1, y es la manera más conveniente de describir la distribución de orientaciones en el espacio (1) (2).

Para describir la textura en tubos se toma como sistema

de referencia las direcciones longitudinal DL, radial DR y transversal DT del tubo, tal como se muestra en las figuras 2y3.

Las tres orientaciones de los prismas hexagonales con el eje "c" aproximadamente paralelo a las direcciones de referencia estan representadas en la figura de polos (0001), figura 3, por las zonas D, C y A.

La textura de tubos de Zircaloy, usados como vainas de elementos combustibles, es tal que los polos (0001) se orientan preferencialmente en forma perpendicular a la dirección longitudinal del tubo DL, con una inclinación entre 30 y 40° respecto de la dirección radial (4) (5). Su figura de polos (0001), figura 1, consiste en una franja estrecha de densidad apreciable que se extiende entre DR y DT, con dos máximos simétricos que son característicos de la textura de tubos y chapas laminadas. La posición e intensidad de estos máximos depende del proceso de fabricación y están estrechamente relacionados con el comportamiento de las propiedades mecánicas.

## II.2. EQUIPAMIENTO EXPERIMENTAL

Se dispone de un goniómetro de Schulz marca Siemens, instalado con una fuente de rayos X marca General Electric. Se utiliza radiación filtrada de Fe  $K\alpha$ . Como el montaje de Schulz corresponde a una geometría por reflexión, este equipo permite determinar la figura de polos hasta una inclinación de 70° respecto a la normal a la superficie de la muestra que corresponde a la dirección radial DR en el caso de tubos.

Durante el funcionamiento del goniómetro, figura 4, la muestra realiza tres movimientos:

- rotación en su propio plano alrededor del eje BB', ángulo  $\phi$ .
- rotación alrededor del eje horizontal AA', ángulo  $\alpha$ .
- oscilación en su plano en la dirección CC'.

Los movimientos de rotación permiten explorar la figura de polos siguiendo dos posibles modos de operación:

- Barridos radiales. Para cada valor de  $\phi$  entre 0 y 360°,  $\alpha$  varía de 0 a 70°. En este caso la medición se realiza siguiendo caminos radiales en la proyección estereográfica.
- Barridos en espiral. Las rotaciones según los ángulos  $\alpha$  y  $\phi$  son simultáneas y sincronizadas. Por cada vuelta completa en  $\phi$ ,  $\alpha$  avanza en un intervalo  $\Delta\alpha$ . En este caso los polos (hkl) describen una espiral en la proyección estereográfica.

En nuestro equipamiento se ha agregado un sistema electrónico de avance por pasos, marca Camberra, que permite explorar la proyección estereográfica punto por punto. Con este dispositivo se pueden obtener figuras de polos con mayor precisión, en comparación con el modo de operación continuo. En todos los casos las intensidades difractadas son detectadas por un contador proporcional y finalmente una impresora proporciona los datos en forma de cinta perforada para su procesamiento posterior.

## II.3. MODO DE OPERACION Y RESULTADOS

Las condiciones de funcionamiento del goniómetro exigen que la muestra sea plana, bien pulida y de una dimensión mínima de 24mm de diametro. Para el caso de tubos de Zircaloy, el procedimiento de preparación de la muestra es el siguiente:

- 1) Adelgazamiento mecánico del tubo hasta un espesor de pared de 0.1mm
- 2) Pulido químico hasta un espesor final de pared de 0.05mm
- 3) Corte longitudinal, enderezado elástico y pegado en soporte plano.

Una vez alineado correctamente el goniómetro, se deben fijar las condiciones de operación de acuerdo a cada caso particular. El procedimiento de operación se puede resumir en los siguientes pasos:

- 1) Colocación de la muestra en el goniómetro respetando las condiciones de alineación.
- 2) Determinación de la ranura que define el ancho del haz de rayos X. Esta es función del tamaño de la muestra, del ángulo de difracción  $2\theta$  y del máximo ángulo de inclinación  $\alpha$ .
- 3) Determinación de la ranura del contador. Su altura es función del intervalo  $\Delta\alpha$  entre dos puntos consecutivos y su ancho se fija en función de un compromiso entre el ensachamiento de las líneas de difracción por desfocalización cuando aumenta  $\alpha$  y la superposición con líneas vecinas.
- 4) Medición de las intensidades de la muestra siguiendo el método de barridos radiales o por espiral. Aquí se deben establecer los valores de  $\Delta\alpha$  y  $\Delta\phi$  dependiendo de la precisión requerida. El tiempo de medida debe ser igual para todos los puntos y se fija de acuerdo a la intensidad de la línea.
- 5) Medición de las intensidades de la muestra de referencia, sin orientaciones preferenciales.
- 6) Cálculo de los coeficientes de textura

$$TC = \frac{IM - FM}{IR - FR}$$

IM y IR, intensidades de la muestra y de la referencia respectivamente

FM y FR, intensidades de fondo correspondientes

- 7) Construcción de la figura de polos.

Del análisis de los distintos modos de operación se establecieron las siguientes condiciones experimentales para el estudio de texturas de tubos:

ancho ranura  $R_1$ : 1.5mm

ancho ranura  $R_2$ : 3mm, polos (0001)  
7.5mm, polos (1010)

radio del goniómetro: 172mm

ángulo  $\alpha$ : 0-70° en pasos  $\Delta\alpha=5^\circ$

ángulo  $\phi$ : 0-360° en pasos  $\Delta\phi=15^\circ$

modo de operación: barridos radiales

tiempo de contaje por punto: 10 segundos

n° de puntos medido por figura de polos: 360

fuelle de rayos X: Fe  $K\alpha$ , 40KV, 10 mA.

En las figuras 5 y 6 se muestran los resultados obtenidos correspondientes a un tubo de Zircaloy, de fabricación alemana, dentro de especificaciones de calidad. La figura 5 corresponde a la superficie exterior y la figura 6 a la superficie interior del tubo.

Las figuras de polos (0001) presentan el aspecto característico de la textura de tubos: concentración de polos en una franja estrecha, comprendida entre DR y DT con máximos simétri-

cos muy intensos. Esto significa que los cristales individuales del material están orientados de tal modo que los polos (0001), esto es el eje "c", son preferencialmente perpendiculares a la dirección longitudinal del tubo, con una inclinación promedio respecto de la dirección radial de:

$$\bar{\alpha} \approx \pm 37^\circ, \text{ cara externa} \quad \bar{\alpha} = \frac{\sum \alpha^2 I^2}{\sum I^2}, \quad 0^\circ < \alpha < 70^\circ$$

$$\bar{\alpha} \approx \pm 35^\circ, \text{ cara interna}$$

Se observa que la superficie interior del tubo presenta una textura más acentuada, con máximos de densidad más definidos y corridos hacia el centro de la proyección. Esto se refleja también en las figuras de polos (10 $\bar{1}$ 0) pues la zona central es de muy baja intensidad y notablemente más extendida en la cara interior del tubo.

Obsérvese también que la textura presenta una asimetría notable respecto de la dirección transversal DT. Esto significa que son más frecuentes los cristalitas con el eje "c" inclinados en el sentido positivo de laminación DT que en el sentido contrario. Nótese por ejemplo la forma de los perfiles de intensidad 6. Puede verificarse además que esta asimetría es más acentuada en la cara interior.

La figura 7 muestra la textura de un tubo de Zircaloy, cara interna, cuya última etapa de procesamiento fue realizada en el país, con una deformación en frío del 57% y un tratamiento térmico de recuperación de 2 horas a 520°C. Se observa que la figura de polos muestra una textura aun más acentuada que el tubo anterior y más concentrada hacia la dirección radial. Esto se deduce de la posición de  $\bar{\alpha} \approx 28^\circ$  en la figura de polos (0001) y por el desplazamiento general de polos (10 $\bar{1}$ 0) hacia el borde de la proyección.

La concordancia de los resultados obtenidos en estas primeras experiencias con la información existente en la literatura (4) (5) (7) (8) es altamente satisfactoria

## REFERENCIAS

- (1) Ch. S. Barret. Estructura de los Metales. Aguilar (1957)
- (2) A. Taylor. X-Ray Metallography. Wiley (1961)
- (3) J. E. Winegar. Reporte interno de Atomic Energy of Canada Ltd, A.E.C.L.-5626. (1977)
- (4) K. Källstrom. Scandunavian Journal of Metallurgy 4 (1975)
- (5) B. A. Cheadle. Seminario presentado en el Curso Panamericano de Metalurgia Nuclear, Buenos Aires (1974)
- (6) J. C. Couterne. Tesis. Commissariat a l'Energie Atomique CEA-R-4725 (1976)
- (7) Hobson. Oak Ridge National Laboratory. ORNL-TM-3500
- (8) Dressler. Comunicación privada.

## AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen al Dr Fernando Iglesias por su asesoramiento y apoyo en el procesamiento de datos. Igualmente reconocen al Sr Daniel Saulino su valiosa colaboración técnica.

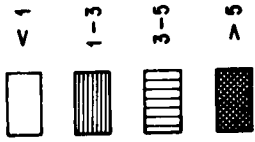
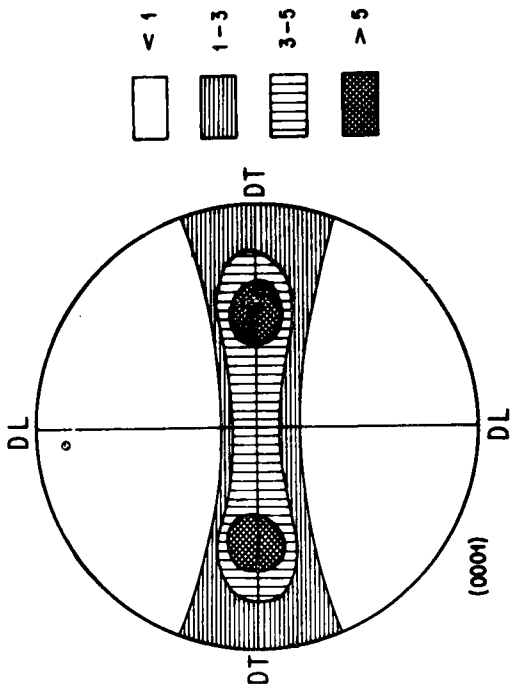


Figura 1

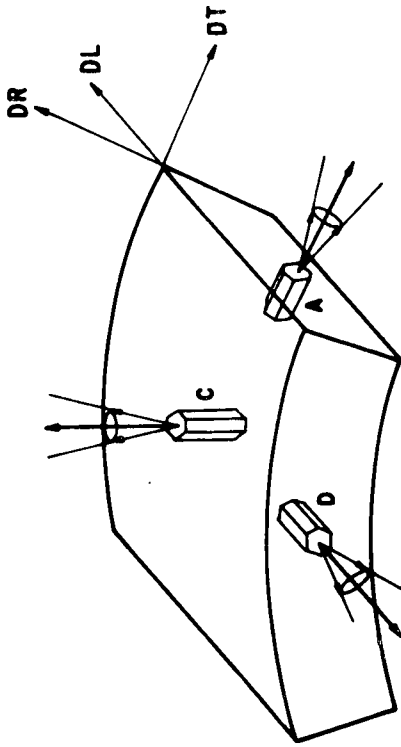


Figura 2

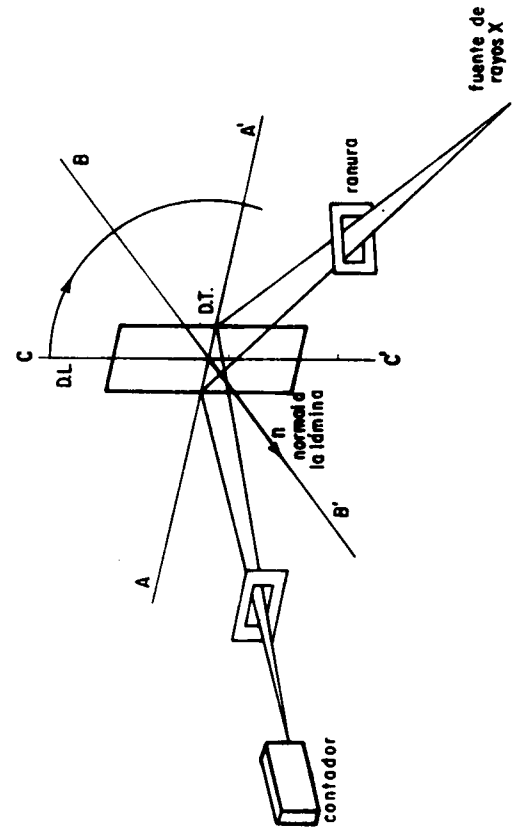


Figura 4

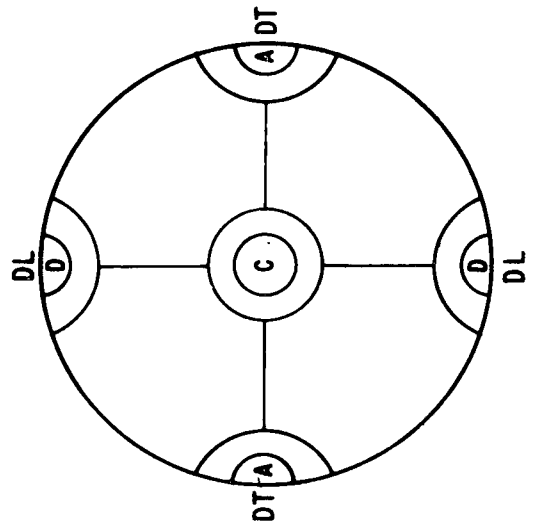


Figura 3

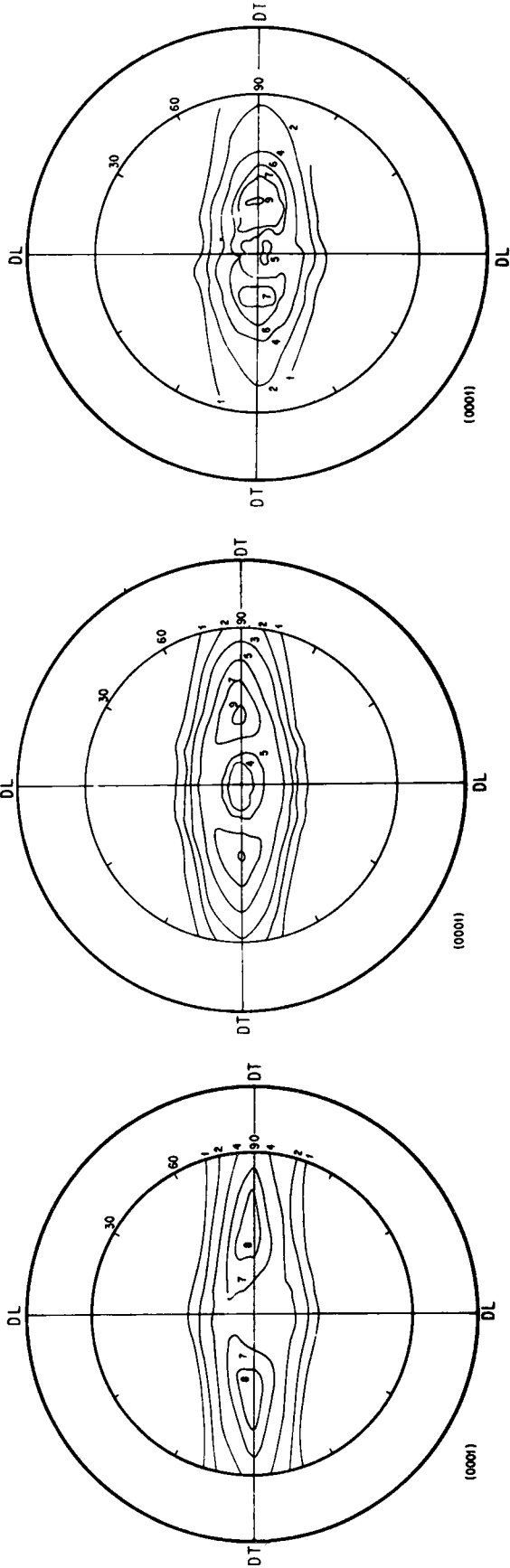


Figura 5

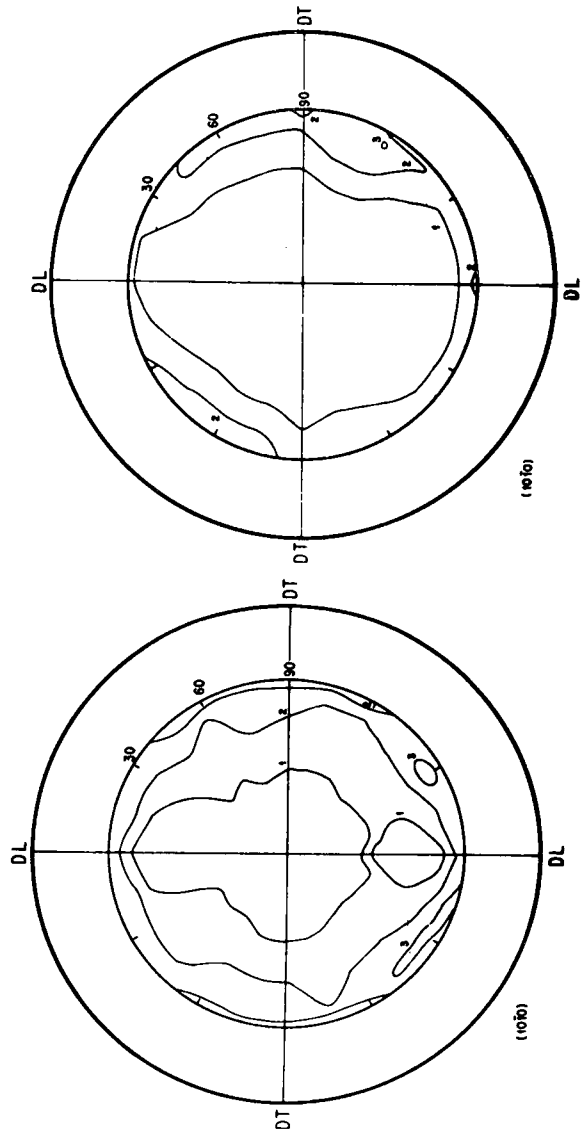


Figura 6

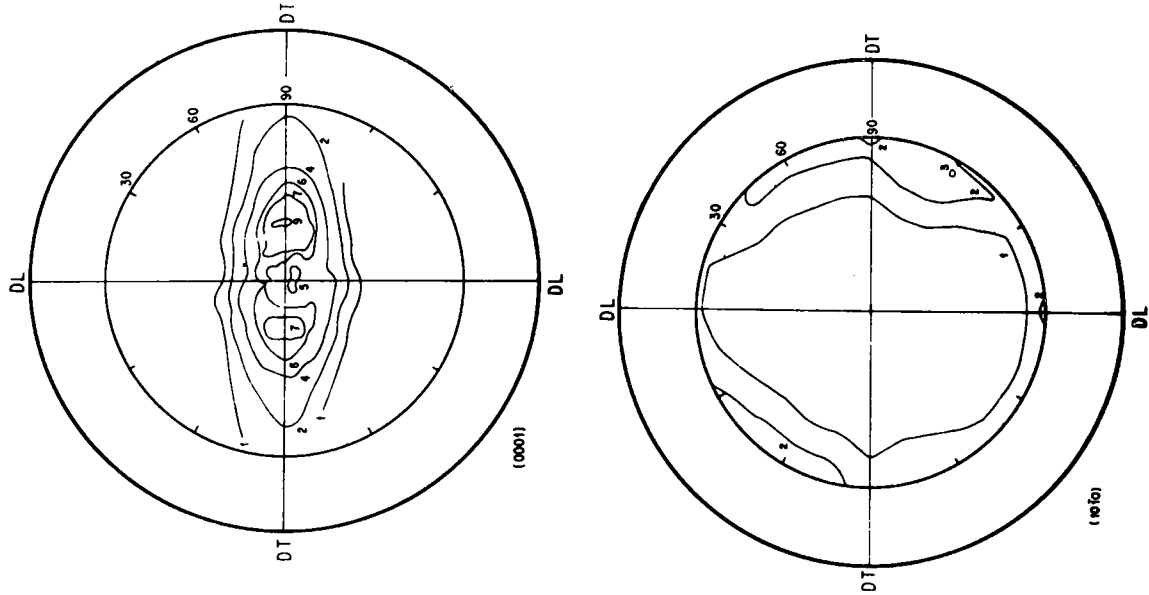


Figura 7