



**ХИМИКОТЕХНОЛОГИЧЕН И МЕТАЛУРГИЧЕН УНИВЕРСИТЕТ**

**ФАКУЛТЕТ ПО МЕТАЛУРГИЯ И МАТЕРИАЛОЗНАНИЕ**

**КАТЕДРА „ФИЗИЧНА МЕТАЛУРГИЯ И ТОПЛИННИ АГРЕГАТИ”**

инж. Никита Александрович Лутченко

**ПРОУЧВАНЕ НА ВЪЗМОЖНОСТТА ЗА ПОЛУЧАВАНЕ НА  
УЛТРАФИНОЗЪРНЕСТА СТРУКТУРА НА ЦИРКОНИЕВИ СПЛАВИ,  
ПОСРЕДСТВОМ МЕТОДИ НА ИНТЕНЗИВНА ПЛАСТИЧНА  
ДЕФОРМАЦИЯ**

## **А В Т О Р Е Ф Е Р А Т**

на дисертация

за придобиване на образователната и научна степен „Доктор”  
по научна специалност в ПН 5.6. Материали и материалознание  
(Материалознание и технология на машиностроителните материали)

Научни ръководители:

проф. д-р инж. Розина Йорданова, ХТМУ

д-р Александър Арбуз, Университет Назарбаев, Казахстан

Научно жури:

1. проф. д-р инж. Емил Михайлов – председател, рецензент
2. проф. д-р инж. Стойко Гюров - рецензент
3. доц. д-р инж. Даниела Григорова
4. проф. д-р инж. Румяна Лазарова
5. проф. д-р инж. Ангел Великов

София, 2025

Дисертационният труд е написан на 174 страници, съдържа 113 фигури и 9 таблици. Цитирани са 270 източника.

Представеният дисертационен труд е обсъден и приет за защита на заседание на разширен научен съвет на научното звено на катедра „Физична металургия и топлинни агрегати”, състояло се на 27.11.2025г.

Публичната защита на дисертационния труд ще се проведе на 00.00.2025 г. от 00:00 часа в зала 301, сграда „А” на ХТМУ.

Материалите са на разположение на интересувашите се на интернет страницата на ХТМУ и в отдел „Научни дейности”, стая 406, етаж 4, сграда „А” на ХТМУ.

## Използвани съкращения

ADS	–	Accelerator Driven Systems
ARB	–	Accumulative Roll Bonding
ASTM	–	American Society for Testing and Materials
BF	–	Bright Field
BWR	–	Boiling Water Reactor
CAD	–	Computer-Aided Design
CANDU –	–	Canada Deuterium Uranium
CEC	–	Cyclic Extrusion Compression
CEE	–	Cyclic Expansion-Extrusion
DOE	–	Design of Experiments
EBSD	–	Electron Backscatter Diffraction
ECAD	–	Equal Channel Angular Drawing
ECAE	–	Expansion equal channel angular extrusion
ECAP	–	Equal Channel Angular Pressing
FA	–	Fuel Assembly
FEM	–	Finite Elements Method
HALEU	–	High-Assay Low-Enriched Uranium
HANA	–	High performance Alloy for Nuclear Application
HCP	–	Hexagonal Close Packed
HPT	–	High Pressure Torsion
HTGR	–	High-Temperature Gas-cooled Reactor
HTR-PM	–	High-Temperature gas-cooled Reactor Pebble-bed Module
IAEA	–	International Atomic Energy Agency
IPF	–	Inverse Pole Figures
LOCA	–	Loss-Of-Coolant Accident
LWR	–	Light Water Reactors
MDA	–	Mitsubishi Developed Alloy
MDF	–	Multi-Directional Forging
NDA	–	New Developed Alloy
NPP	–	Nuclear Power Plant
ODF	–	Orientation Distribution Function
PCMI	–	Pellet-cladding mechanical interaction
PCMI- SCC	–	Pellet-cladding interaction-stress corrosion cracking
PHWR	–	Pressurised Heavy Water Reactor
PWR	–	Pressurized Water Reactor
RSR	–	Radial Shear Rolling
RXA	–	Recrystallized Annealed
SIPA	–	Stress Induced Preferential Absorption
SMR	–	Small Modular Reactor
SPD	–	Severe Plastic Deformation
SPP	–	Secondary Phase Particles
SRA	–	Stress-Relieved Annealed
TCAP	–	Twist channel angular pressing
TEM	–	Transmission electron microscopy
UFG	–	Ultrafine-Grained
VVER	–	от руски: Vodo-Vodyanoi Energeticheskiy Reaktor
WWER	–	Water-Water Energetic Reactor
XRD	–	X-ray Diffraction



## **Въведение и актуалност на изследователската тема**

Съвременната енергетика изисква технологии с висока ефективност, безопасност и екологичност. На фона на нарастващото население и електрификацията, преходът към устойчиви енергийни източници е особено актуален, като ядрената енергетика заема ключово място сред тях, благодарение на стабилното енергоснабдяване и ниския въглероден отпечатък.

Надеждността на ядрените реактори до голяма степен се определя от свойствата на конструкционните материали, особено, когато става въпрос за обвивката на топлоотделящите елементи (основен компонент на ядрени реактори), работещи при високи температури, налягания и радиация.

Едно от основните приложения на циркониевите сплави е в ядрените реактори. В ядрения реактор, горивните пръти са облечени с циркониева сплав, за да се предотврати отделянето на радиоактивни материали в охлаждащата течност. Циркониевите сплави традиционно се използват благодарение на ниското си сечение на улавяне на термични неутрони, корозионна устойчивост и механична якост, но с времето те губят експлоатационните си качества. Основните проблеми при експлоатацията на циркониевите сплави са деградацията на свойствата, радиационният ръст, пълзенето, водородното окрежкостяване и пукнатинообразуването. Във връзка с това се засили интересът към създаването на ултрафинозърнести (УФЗ) и наноструктурни материали, в случая циркониеви сплави, които да осигурят повишаване на якостта, твърдостта, издръжливостта на умора и радиационната устойчивост. Тези свойства са свързани с високата плътност на границите на зърната, които ефективно задържат радиационно-индуцираните дефекти и намаляват вероятността от образуване на дислокационни вериги и микропукнатини.

Освен размерите на зърното, важна е и кристалографската текстура, която определя анизотропията на свойствата на циркония, който е с ХПО-решетка. Контролът на текстурата позволява да се намали радиационният растеж и да се повиши дълготрайността на топлоотделящите елементи.

За получаване на УФЗ-структура се използват методи за интензивна пластична деформация, като: равноканално ъглово пресуване (РКЪП), усукване под високо налягане и особено радиално-срязващо валцуване (РСВ).

Радиално-срязващото валцуване се отличава с това, че съчетава интензивното раздробяване на зърното с възможността за обработване на дълги заготовки, което прави метода перспективен за производството на обвивки за топлоотделящите елементи. При този метод на интензивна пластична деформация се формира сложно напрегнато-деформационно състояние в зоната на деформация на метала, което спомага за създаването на градиентна ултрафинозърнеста структура и благоприятна текстура.

Ето защо, изследването на приложението на радиално-срязващото валцуване към циркониеви сплави за формиране на ултрафинозърнеста структура и подобряване на механичните свойства, текстурата и радиационната устойчивост, е актуална научна и приложна задача, отговаряща на изискванията на съвременната ядрена енергетика.

### **Цели и задачи на дисертационния труд**

– да се анализират съвременните изисквания към конструкционните материали, използвани за активните зони на ядрените реактори, да се идентифицират ключовите механизми на деградация при радиационни условия и целесъобразността от използването на ултрафинозърнести (УФЗ) структури на базата на циркониеви сплави;

– да се обобщат и класифицират съществуващите методи за получаване на УФЗ-структура и да се оцени тяхната приложимост към циркониеви сплави, като се вземат предвид мащабируемостта, геометрията на продукта и условията на работа на реактора;

– да се разработи технологична схема за радиално-срязващо валцуване на циркониева сплав, при използване на метода на крайните елементи за моделиране на процеса на валцуване, да се изследват особеностите и закономерностите на напрегнато-деформационното състояние на метала по време на валцуване и да се оптимизират геометричните и технологичните параметри на валцуването;

– да се реализират серия от експериментални валцувания на стан за радиално-срязващо валцуване с цел получаването на валцувани пръти (заготовки) с различни диаметри за анализ и оценка на промяната на микроструктурата на сплавта;

– да се изследва еволюцията на микроструктурата по напречното сечение на получените чрез радиално-срязващо валцуване пръти (заготовки), използвайки методите на трансмисионната и сканиращата електронна микроскопия, включително EBSD-картографиране, както и анализ на характеристиките на текстурата (вкл. изчисляване на параметрите на Kearns);

– да се изследва фината структура на образците, получени чрез радиално-срязващо валцуване чрез електронен микроскоп с висока резолюция;

– да се получат експериментални данни за механичните свойства получените пръти от изследваната циркониева сплав чрез радиално-срязващо валцуване;

– да се облъчат проби от изследваната циркониева сплав с тежки йони, за да се симулират условията на увреждане от фрагменти от делене в активните зони на реактора.

### **Методология и методи на изследване**

При изпълнение на този проект са използвани както теоретични, така и експериментални методи за научни изследвания. Към класическите теоретични методи се отнасят: анализ на научна и патентна литература, експериментално планиране и статистическа обработка на експериментални данни. Освен това, компютърно моделиране с помощта на метода на крайните елементи (МКЕ) е използвано за анализ на напрегнато-деформираното състояние по време на разработването на технологията за радиално-срязващо валцуване на цирконий. Методът е използван за оптимизиране на технологията за производство на ултрафинозърнест цирконий и е реализиран с помощта на

софтуерния пакет DEFORM-3D (Scientific Forming Technologies Corporation, САЩ). Впоследствие същият метод на крайните елементи е използван за прогнозиране на поведението на конструкции, изработени от вече произведен ултрафинозърнест цирконий. За конструиране на цялата геометрия е използвана САД системата КОМПАС-3D (АСКОН, Русия) с модула АРМ-Expert.

Проведен е пълномашабен експеримент по производство на ултрафинозърнест цирконий, използвайки на радиално-срязващите валцови станове RSP-14/30 (известен също като SVP-08), инсталиран в Рудненски индустриален университет и стан RSP-10/30, работещ в Карагандински индустриален институт.

Механичните свойства бяха изследвани чрез стандартни изпитвания на опън на машина Instron, САЩ и чрез измерване на микротвърдост по скалата на Викерс (HV) на микротвърдомер Shimadzu HVM-G31 ST.

Част от реологичните изследвания за разработване на компютърни модели бяха проведени с помощта на пластометър Gleeble-3800-GTC (Dynamic Systems Inc., САЩ) в Технологичния университет в Ченстохова, Полша. Промените във фазовия състав на пробите бяха изследвани с помощта на рентгенова дифракция (XRD) на дифрактометър Rigaku SmartLab, Япония.

Микроструктурното изследване на пробите е проведено с помощта на сканираща електронна микроскопия с висока резолюция и трансмисионна електронна микроскопия, като са използвани следните микроскопи: сканиращ електронен микроскоп с полева емисия Zeiss CrossBeam-540, Германия, сканиращ електронен микроскоп JSM IT200LA, JEOL, Япония и трансмисионен електронен микроскоп JEM-1400PLUS, JEOL, Япония. В допълнение към режещите и шлифовъчни машини, за подготовка на пробите е използвано електролитно ецване с помощта на системи TenuPol-5 и LectroPol-5, Struers, Дания.

В ускорителния комплекс ДЦ-60 на клона в Астана на Института по ядрена физика на Националния ядрен център на Република Казахстан е проведено изследване на радиационната устойчивост и процесите на образуване на дефекти под въздействието на облъчване.

## **1 Технологии за получаване и перспективи за приложение на ултрафини материали в ядрената енергетика**

### **1.1 Материали за ядрената енергетика. Основни изисквания и тенденции в развитието**

Глобалното потребление на енергия нараства постоянно, като се е увеличило от 20 000 tWh през 1965 г. до над 160 000 tWh през 2021 г. Развиващите се страни са движещата сила на по-голямата част от този растеж, но развитите икономики също увеличават потреблението чрез електрификация на промишлеността и транспорта. Въпреки нарастващия дял на възобновяемата енергия, петролът и въглищата запазват водещите си позиции, докато използването на променливи възобновяеми източници (слънчева и

вятърна енергия) е ограничено от стабилност, проблеми с балансирането и високи разходи за инфраструктура.

При тези условия ядрената енергетика, способна да осигури нисковъглеродно и стабилно енергийно снабдяване, е особено важна. Над 400 реактора работят по целия свят, повече от 80% от които са леководни реактори. Ядрената енергетика има високо ниво на безопасност: в повече от 60-годишната си история са регистрирани само три сериозни аварии и статистически тя е един от най-безопасните енергийни сектори. Съвременните разработки са насочени към намаляване на рисковете чрез реактори от четвърто поколение, малки модулни реактори (SMR) и технологии със затворен горивен цикъл.

Решаването на проблема с радиоактивните отпадъци остава ключова област на напредък. Провеждат се изследвания върху използването на бързи реактори, ADS системи и трансмутационни технологии, които намаляват дългосрочната токсичност на отпадъците. SMR, със своя модулен дизайн, гъвкаво използване и пасивна безопасност, демонстрират потенциал за широко приложение през следващите десетилетия.

Надеждността на ядрената енергия се определя от качеството на структурните материали. В активната зона на реактора те трябва да издържат на високи температури (до 350°C при нормални условия и над 900°C по време на аварии с LOCA), налягания (70–155 bar) и интензивен неутронен поток ( $\sim 10^{13}$ – $10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> s). Материалите за облицовка на горивните пръти са от най-голямо значение, където традиционно се използват циркониеви сплави поради ниското им напречно сечение на неутронен улов, устойчивост на корозия и задоволителни механични свойства.

От 50-те години на миналия век насам е разработена широка гама от циркониеви сплави: Zircaloy-2, Zircaloy-4, E110, E125, E635, ZIRLO, M5 и други, различаващи се по съдържанието на Sn, Nb, Fe, Cr, Ni и други. В различни страни се разработват нови състави (NDA, MDA, HANA, AXIOM и други), но тяхното внедряване изисква потвърждение на техните експлоатационни предимства. Настоящите тенденции са към постепенно изоставяне на Zircaloy-4 в полза на сплавите E110, E635, ZIRLO и M5, които осигуряват по-висока устойчивост на корозия, устойчивост на водородна крехкост и способност за работа при повишени температури и изгаряне на гориво. По този начин развитието на ядрената енергетика е тясно свързано с усъвършенстването на конструкционните материали, по-специално циркониевите сплави, които остават основа за повишаване на надеждността и безопасността на съвременните и бъдещите реактори.

## **1.2 Дефекти, повреди и ефекти от облъчване в ядрени облицовки от циркониева сплав**

Един от ключовите фактори, определящи експлоатационната надеждност на ядреното гориво, е устойчивостта на циркониевата обвивка на различни видове деградации, причинени от механични, химични и радиационни фактори. Първичните механични дефекти включват износване между

решетката и пръта и износване от трене, както и взаимодействие между горивната таблетка и обвивката (PCMI) и свързаното с него напукване от корозия под напрежение (PCI-SCC). Тези дефекти се образуват поради вибрации на горивните пръти, контакт с опорните елементи на сглобката, наличие на чужди частици в топлоносителя и напрегнати взаимодействия между горивната таблетка и циркониевата обвивка по време на промени в мощността. Последиците от тези процеси са локализирано износване на материала, проникване на топлоносител в пръта и образуване на пукнатини.

Корозионните повреди включват локализирани огнища на разрушаване, причинени от нарушавания във водната химия или излагане на агресивни продукти на делене. Натрупването на водород в материала играе значителна роля, причинявайки образуването на крехки циркониеви хидриди и развитието на хидридни напуквания. Вторичните дефекти – хидридни мехури, вътрешни корозионни зони, микропукнатини и локализирани разкъсвания – се образуват в резултат на проникване на топлоносител през първично увреждане.

Радиационните ефекти са фундаментални за деградацията на обвивката. Облъчването с бързи неутрони и гама-лъчи инициира образуването на точкови дефекти, дислокационни бримки и ваканционни кълъстери, което води до радиационно втвърдяване, растеж и пълзене. Радиационното втвърдяване увеличава якостта на материала, но намалява неговата пластичност, увеличавайки риска от крехко разрушаване. Радиационният растеж се проявява като анизотропна деформация, дължаща се на хексагоналната кристална решетка на циркония, и причинява геометрични промени в горивните елементи. Пълзенето при облъчване допълнително изостря деформацията, намалявайки експлоатационната надеждност. Ключов фактор, определящ дълготрайността на циркониевата облицовка, е кристалографската текстура, образувана по време на деформация и термична обработка. Ориентацията на базалните равнини определя податливостта на радиационно индуциран растеж, пълзене и образуване на хидриди. Параметърът на Kearns, който характеризира разпределението на ориентациите на зърната и предсказва експлоатационните свойства, се използва за количествено определяне на анизотропията. Изследванията показват, че оптимизирането на текстурата и размера на зърната е критичен инструмент за подобряване на радиационната устойчивост на циркониевите сплави.

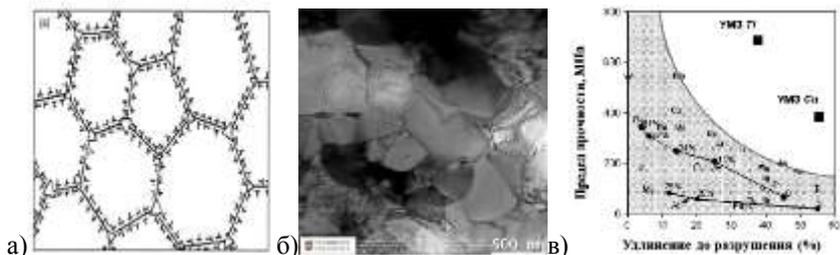
По този начин, комбинация от механични, корозионни и радиационно индуцирани дефекти определя надеждността на облицовката на горивните пръти. Минимизирането на тези процеси изисква научно обоснован подход към избора на състав, микроструктура и текстура на циркониевите сплави, което е стратегическа цел за по-нататъшното развитие на ядрената енергетика.

### **1.3 Ультрамелкозернистите материали и особености и перспективи их применения в ядрената енергетика**

Един от най-обещаващите подходи за подобряване на характеристиките на материалите за ядрена енергетика е използването на ултрафинозърнести (УФЗ) и наноструктурирани (НС) състояния. Циркониевите сплави, традиционно

използвани за облицовка на горивни пръти, обикновено имат размери на зърната от 5–20  $\mu\text{m}$ , докато образуването на зърнеста структура с характерен размер по-малък от 1  $\mu\text{m}$  може значително да промени както механичните, така и радиационните свойства.

УФЗ-материалите се характеризират с повишена якост поради укрепване на границите на зърната чрез механизма на Хол-Петч. При преход към наномащаб (<100 nm) допринасят допълнителни механизми: междузърнено плъзгане, активното участие на границите като източници и натрупвания на дислокации и образуването на неравновесни граници на зърната. Такива структури едновременно осигуряват висока якост и приемлива пластичност веднага след производството, което ги прави привлекателни за ядрените технологии, Фиг. 1.



Фиг. 1. Особенности на УФЗ-материали

а) Схематично представяне на УФЗ-структура на метала; б) ТЕМ изображение на структура на УФЗ цирконии; в) механични свойства на обичайни и УФЗ структурни състояния за различни метали

Ключов фактор за повишаване на радиационната твърдост в УФЗ и наноструктурираните материали е високата плътност на границите на зърната, които действат като ефективни капани за радиационно индуцирани дефекти. Това ускорява тяхното унищожаване и намалява вероятността от натрупване на повреди, водещи до крехкост и раздуване на материалите. Този ефект е потвърден от експерименти не само върху циркониеви сплави, но и върху аустенитни стомани, където структурирането е намалило степента на аморфизация и радиационно втвърдяване.

Глобалните изследвания в тази област се развиват активно във водещи ядрени центрове в САЩ, Франция, Япония и други страни, което потвърждава високия интерес към тази област.

#### 1.4 Съществуващи методи за получаване на ултрафини материали.

За повишаване на якостта и радиационната устойчивост, образуването на ултраfinoзърнести и наноструктурирани състояния е обещаващо. Класическите подходи - бързо втвърдяване (разтопяване чрез центрофугиране, газова атомизация, формуване чрез разпръскване), адитивно производство (SLM/EBM), химичен синтез (зол-гел) и прахова металургия - са ефективни за прахове, тънки филми и сложни геометрии, но имат ограничения за големи

метални части с голяма дължина (горивни тръби). Бързото втвърдяване произвежда предимно прахове/филми, което затруднява прецизия контрол на свойствата; адитивните процеси са ограничени от скоростта и размера, съчетани с висока цена; зол-гел е времеемък, материалоемък и по-подходящ за оксиди; праховата металургия страда от остатъчна порьозност и висока цена на изходните прахове, което влошава вискозитета и пластичността и усложнява мащабирането.

Методите за тежка (силна, интензивна) пластична деформация са оптималната платформа за производство на обемни заготовки с хомогенна УФЗ-структура. Те елиминират порьозността, присъща на синтероването, но изискват следните ключови условия: (i) натрупано напрежение  $\epsilon > 6-8$ ; (ii) високо хидростатично налягане ( $\approx GPa$ ) за предотвратяване на разрушаване и релаксация на дефекти; (iii) температура под температурата на рекристализация за Zr сплави – под областта  $\alpha \rightarrow \alpha + \beta$ ; (iv) немонотонна/турбулентна схема на деформация за формиране на граници с високи ъгли. Колкото по-пълно са изпълнени тези изисквания, толкова по-бързо и по-равномерно се формира УФЗ-състоянието.

Най-изучаваните процеси на тежка пластична деформация включват: Усукване под високо налягане – производство на дискови образци с изключително издребняване на зърната; ARB (Accumulative Roll Bonding) е процес на многократно валцоване, използващ междуслочно заваряване и натрупване на деформация в листове; Многоосно коване е редуващо се компресиране по няколко оси за големи заготовки; Циклично екструзионно компресиране е многократно преминаване през канал с противоналягане, като се запазват същите размери; Равноканално ъглово пресуване е пресуване през ъглов канал с равно сечение и траектории на завъртане, мащабируемо до пръти със сантиметров размер и частично внедрено в промишлеността. Разработени са и множество модификации и хибриди на тези процеси като екструдирани с усукване, асиметрично валцоване и др.

Въпреки високата научна зрялост на тези подходи, широкото им промишлено приложение е ограничено от:

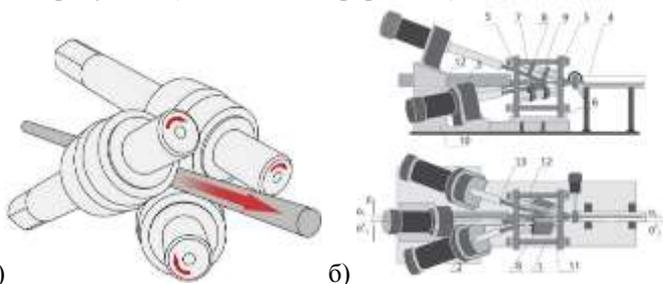
- сложността и цената на специализираната инструментална екипировка и прецизия контрол на процеса;
- ограниченията на формата и размера (често малки дискове/пръти, трудности с дълги продукти);
- високата консумация на мощност и енергия, както и дългият живот на инструмента. Тези бариери са особено критични за дълги кухи или плътни продукти, като например горивни тръби, където непрекъснатостта на процеса, високата производителност и структурната стабилност по цялата им дължина са от съществено значение.

Като се вземат предвид тези изисквания, преходът към радиално-срязващо валцуване като вариант на интензивна пластична деформация, пригоден за дълги кръгли заготовки, е оправдан. Радиално-срязващото валцуване осигурява интензивни градиентни деформации на срязване при значително

всестранно натиск, съвместим е с валцовите линии, технологично е по-близо до индустриалните маршрути и позволява производството на УФЗ-клас материали в пръти (и тръбни заготовки) с контролирани структурни характеристики на разпределение по напречното сечение. Това създава предпоставки за машабируемо производство на радиационно устойчиви УФЗ-циркониеви полуготови продукти и последващото адаптиране на технологията към производството на компоненти за облицовка на горивни пръти.

### 1.5 Технология на радиално-срязващо валцуване за получаване на дълги ултрафинозърнести материали

Радиално-срязващото валцуване е вид напречно (спирално) валцуване на плътни заготовки на тривалцов стан. Процесът е фундаментално подобен на технологията за пробиване на тръби, но се различава по това, че използва три специално калибрирани валци (Фиг. 2) вместо два и прилага големи ъгли на подаване ( $18\text{--}25^\circ$ ). За разлика от традиционното пробиване, където малките ъгли на подаване причиняват ефекта на Манесман, създавайки аксиална кухня, радиално-срязващото валцуване уплътнява материала по цялото напречно сечение на заготовката, предотвратявайки вътрешно разрушаване дори при големи редукции (абсолютни деформации).



Фиг. 2. а) Схема на напречно-винтово валцуване; б) Принципна схема на Радиално-срязващ мини валцов стан

Ключовата характеристика на процеса е комбинацията от всестранен натиск и интензивна срязваща деформация, съпроводена от турбулентен поток на метала в зоната на деформация. Това напрегнато-деформационно състояние създава сложен градиент на скоростите и посоките на изтичане на метала по радиуса, което води до удължаване, изтъняване и силно разпръскване на структурните елементи на метала. Външните слоеве на детайла са подложени на редуващо се натиск и опън по спираловиден път, създавайки условия за образуване на изотропни фини частици и характерна ивична структура.

Важна характеристика на радиалното-срязващо валцоване са немонотонните и многократни деформационни пътища. Това улеснява образуването на голямоъглови граници на зърната, необходими за ултрафинозърнести условия. Процесът комбинира елементи на надлъжно валцуване и пресуване, осигурявайки дълбоко структурно издребняване в целия обем на детайла. За практическо приложение са разработени компактни

валцови станове с малък диаметър, способни да обработват детайли с размери от 10 до 40 mm. Тези агрегати се отличават с различни схеми за регулиране на валцуването (аксиално или радиално), поддържат многоетапно валцуване и позволяват променливи параметри на процеса. Този подход отваря възможността за производство на дълги пръти с контролирана УФЗ-структура, като дължината на продукта е ограничена само от специфичните параметри на валцуването.

Може да се заключи, че радиално-срязващото валцуване най-добре отговаря на ключовите изисквания за методите за тежка пластична деформация: то осигурява големи акумулирани деформации, високи нива на всеотрастен натиск, турбулентен поток и възможност за обработване на дълги детайли. Това го прави обещаващ инструмент за получаване на ултраfinoзърнести състояния в циркониеви сплави, предназначени за облицоване на горивни пръти, и подчертава високото научно и практическо значение на по-нататъшните изследвания в тази област.

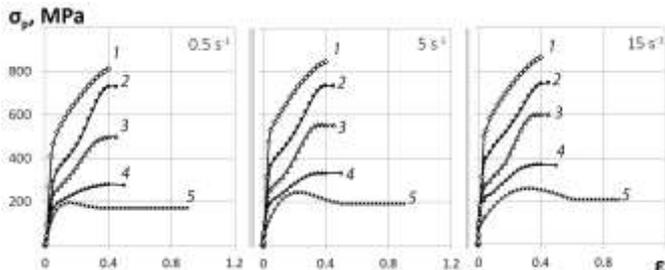
## **2 Компютърно моделиране и разработване на технология за получаване на УФЗ-цирконий чрез радиално-срязващо валцуване**

### **2.1 Пластометрични изследвания на реологичните свойства на изследваната циркониева сплав и формиране на база данни за материала, използвана за компютърно моделиране**

За изследване на характеристиките на процеса на радиално-срязващо валцуване е използван софтуерът Deform, програма базирана на метода на крайните елементи. Като прототип е използван проектът на съществуващ валцов стан SVP-08 (RSP-14/30). Симулиран е детайл с диаметър 37 mm и дължина 150 mm, който е подложен на преддеформационно нагряване при температура 530°C, което елиминира фазовите трансформации в сплавта. Скоростта на валцуване е 100 об/мин, а коефициентът на триене при контакта между детайла и валуца е приет за 0.7 (според модела на Зибел), което съответства на условия на гореща деформация при високо контактно налягане.

Изчислението е извършено в неизотермичен режим, като едновременно са решавани механични и термични проблеми. Зададени са коефициенти на топлопреминаване за детайла с околната среда и инструментите. Геометрията на валците е проектирана в КОМПАС-3D и импортирана в Deform в STL формат. Валците са третираны като идеално твърди тела, а детайлът - като еластично-пластичен материал. Използваният материал е сплав E110 (Zr-1% Nb), използвана за производство на компоненти на активната зона на реактора. Тъй като не е включена в стандартната база данни Deform, беше създадена нова база данни за материала, базирана на пластометрични изпитвания. Пластометричните експериментите бяха проведени с използване на едноосно компресиране на цилиндрични образци с диаметър 10 mm, използвайки стенд Gleeble 3800 с модул Pocket Jaw. Диапазонът на скоростта на деформация беше 0,5–15 s<sup>-1</sup>, а температурният диапазон беше от 20 до 650°C, което съответства на условията на реален процес на радиално-срязващо валцуване.

Контролът на температурата беше постигнат с помощта на термодвойки Chromel-Copel, заварени към образеца. За намаляване на триенето бяха използвани графитни дистанционни елементи и керамична смазка. Получените криви на «напрежение-деформация» (Фиг. 3) показаха намаляване на съпротивлението на деформация с приблизително 77% при нагряване от 20 до 650°C. В същото време, увеличаването на скоростта на деформация повиши съпротивлението: при ниски температури ефектът беше незначителен, а при 650°C беше около 25%.



Фиг. 3. Криви на деформация за сплав E110, получени при използване на пластометър «Gleeble 3800» в диапазона на скоростта на деформация  $0,5\div 15\text{ s}^{-1}$  при температури: 1 – 20 °C; 2 – 200 °C; 3 – 350 °C; 4 – 500 °C; 5 – 650 °C

Анализът на кривите показва, че в диапазона от 350–500°C се наблюдава намаляване на коефициента на уякчаване поради активирането на допълнителни системи за плъзгане и процеси на динамично възстановяване. При 650°C кривите придобиват куполообразна форма: след достигане на максимално съпротивление при деформация от 0,15–0,30, настъпва етап на стационарно течение, характерен за сплави с хексагонална кристална решетка.

Въз основа на получените данни е създадена нова база данни за материали за Deform-3D, обхващаща температурен диапазон от 20–650°C и скорости на деформация от 0,5–15  $\text{s}^{-1}$ . Това позволи точно възпроизвеждане на реологичните свойства на сплавта E110 при симулации на радиално-срязващо валцуване и последващото ѝ използване в числени експерименти.

## 2.2 Изграждане на компютърен модел на технолозирането на радиално-срязващо валцуване и анализ на напрегнато-деформираното състояние с оглед получаване на ултрафина структура на циркониевата сплав

За да се построи коректен модел на радиално-срязващо валцуване, в средата Deform беше създадена високопрецизна 3D геометрия на валците на прокатен стан SVP-08. Валците са разположени симетрично спрямо оста на детайла, под ъгъл от 120°, осигурявайки равномерна абсолютна деформация по диаметъра на заготовката (редуциране). За дефиниране на абсолютните стойности на редуциране, като се изчислят компонентите на изместване на валците, беше използвана декартова координатна система. По този начин, при обща относителна деформация от 3 mm след всеки проход, радиалното

изместване на всеки валец беше 1,5 mm, което позволява точни координати на изместване.

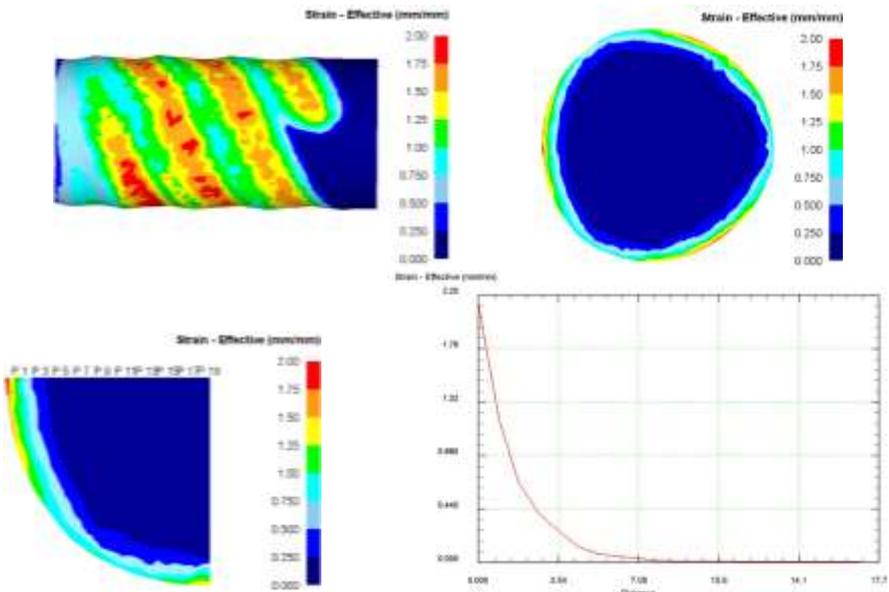
При анализ на напрегнато-деформационното състояние бяха взети предвид три ключови критерия: еквивалентна деформация, еквивалентно напрежение и средно хидростатично налягане.

**Еквивалентна деформация, Фиг. 4.** Резултатите от моделирането показваха спираловиден модел на натрупване на деформация: максимални стойности се образуват по продължение на спираловидната линия в контактните зони с валците. В напречното сечение разпределението беше изключително неравномерно: нивото на деформация достигна 2,1 на повърхността и намалява до нула към центъра. Графиката на радиалното разпределение показва експоненциално намаляване на стойността на параметъра, което показва образуването на ясно изразен структурен градиент.

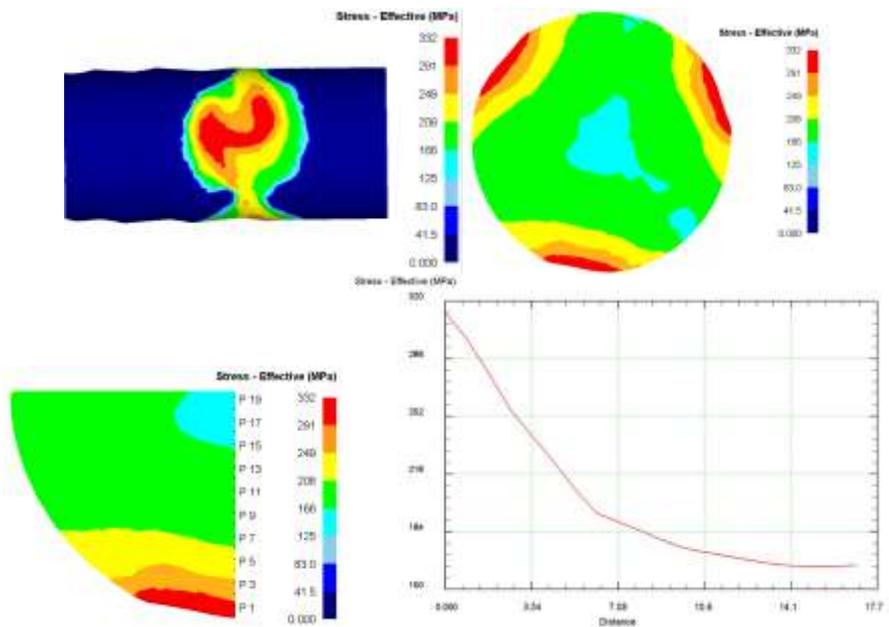
**Еквивалентно напрежение, фиг. 5.** Напрегнатото състояние обхваща цялата пръстеновидна повърхност на зоната на деформацията. Максималните стойности са регистрирани в зоната на контакт с валците, като разпределението има зигзагообразен характер, обусловен от различна конусност на работните повърхности на валците. В напречно сечение напреженията се разпространяват върху целия обем на заготовката: от 313 МПа на повърхността до 163 МПа в центъра. Кривата има плавен параболичен вид, което свидетелства за доста равномерно намаляване на нивото на напреженията.

**Средно хидростатично налягане, Фиг. 6.** Параметърът се разпределя по-равномерно, образувайки овални зони в местата на контакт. В напречно сечение се вижда ясно променлив характер: натисковите напрежения на повърхността (до -558 МПа) преминаваха в опъновни напрежения в централната зона (+90 МПа).

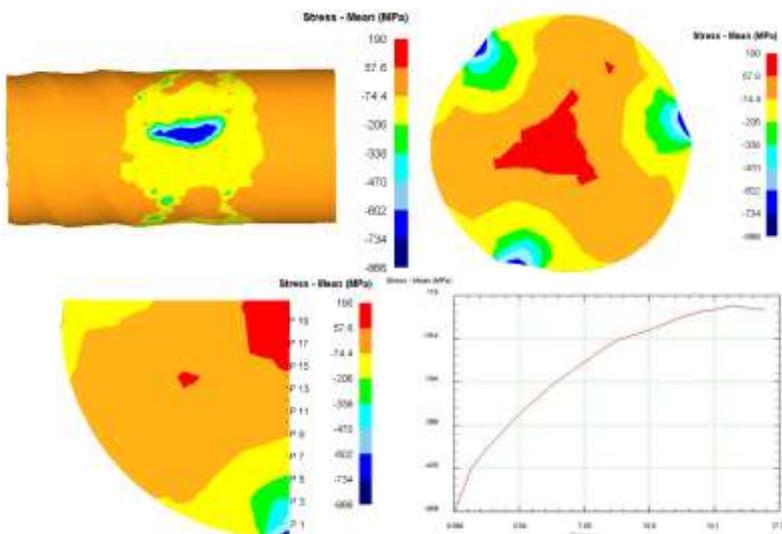
Съотношението между тези параметри показва доминиране на натисковите напрежения, чиято величина надвишава повече от шест пъти нивото на опъновите напрежения. Моделът на радиално-срязващо валцуване демонстрира адекватно възпроизвеждане на реалния процес. Характерът на разпределението на деформациите и напреженията съответства на известните експериментални данни. Високите стойности на напреженията на натиск, придружени от изразен градиент на деформациите, сочат възможността за ефективно раздробяване на зърнестата структура и формиране на ултрафинозърнесто състояние. При това се наблюдава градиентен характер на разпределението на структурата по напречното сечение на заготовката, което отваря перспективи за последващо целево управление на свойствата на циркониевите сплави в елементите на активната зона на ядрените реактори.



Фиг. 4. Разпределение на еквивалентната деформация в заготовката



Фиг. 5. Разпределение на еквивалентното напрежение в заготовката



Фиг. 6. Разпределение на средното хидростатично налягане в заготовката

### 2.3 Определяне на оптималните технологични параметри на радиално-срязващото валцуване на цирконий въз основа на компютърно моделиране

В изследването е проведена оптимизация на процеса на радиално-срязващо валцуване на циркониева сплав Zr-1%Nb. За критерий за оптималност е избран степента на деформация, тъй като този параметър интегрално отразява влиянието както на геометричните, така и на технологичните фактори.

За оценка на ефективността на процеса са разгледани два режима:

- **Режим 1** – с високи единични абсолютни деформации по диаметъра в първите проходи;
- **Режим 2** – с малки абсолютни деформации в началните етапи.

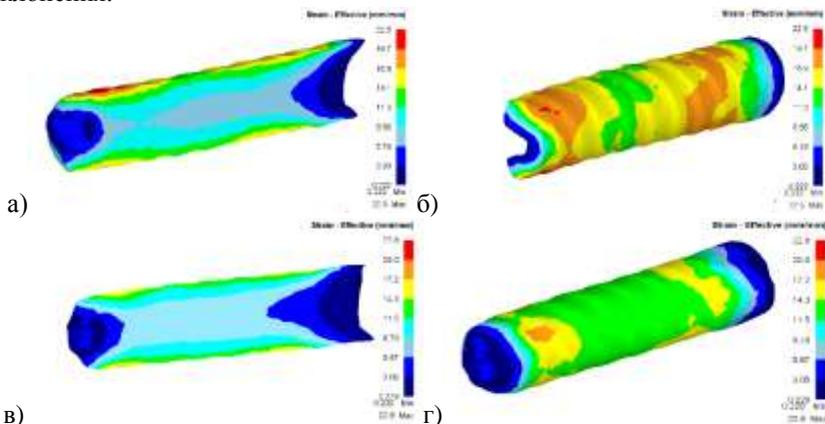
Таблица 1. Различни режими на радиално-срязващо валцуване

проход	Режим 1			Режим 2		
	D <sub>0</sub> , mm	D <sub>1</sub> , mm	Абсолютна деформация ΔD, mm	D <sub>0</sub> , mm	D <sub>1</sub> , mm	Абсолютна деформация ΔD, mm
1	37	34	3	37	35.5	1,5
2	34	31	3	35.5	34	1,5
3	31	30	1	34	32	2
4				32	30	2

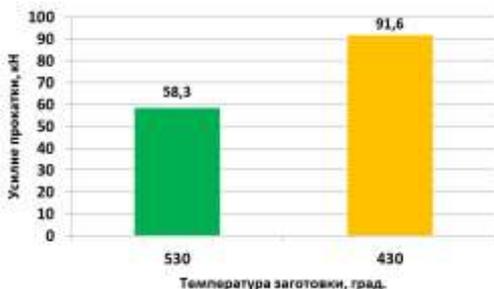
Резултатите от моделирането показаха, че максималното ниво на деформация и за двата варианта е сравнимо (22,5 и 22,8), но разпределението

на деформацията по напречното сечение се различава значително, Фиг. 7. В режим 1 се наблюдава изразена неравномерност и локална концентрация на деформациите, което води до нестабилност на процеса. Обратно, режим 2 осигурява по-равномерно поле на деформациите и намаляване на пиковите натоварвания.

Вариациите в температурата показваха, че понижаването температурата на предеформационното нагряване на заготовката спрямо базовото ниво (530 °C) рязко увеличава усилието на деформация, Фиг.8. Дори понижаване на температурата само с 100°C води до увеличаване на натоварването практически до гранични стойности. Това се дължи на повишаване на съпротивлението на деформация и риска от прекъсване на процеса. Напротив, повишаването на температурата води до рекристализация, което изключва възможността за получаване на ултрафина структура. В резултат на това оптималното решение е запазване на базовата температура без значителни отклонения.



Фиг. 7. Разпределение на деформациите след радиално-винтово валцуване а, б – осеви и повърхностни зони; режим 1; в, г – осеви и повърхностни зони; режим 2



Фиг. 8. Сила на валцуване при различни температури на предеформационно нагряване на заготовките

Скоростта на валцуване се оказва по-малко критичен параметър. Промените от  $\pm 20\%$  от номиналната стойност (100 об/мин) доведоха само до незначителни колебания на усилието (в границите на 4–5 %), Фиг. 9.

При валцуване по схемата 37 mm  $\rightarrow$  20 mm (осем прохода, обща деформация около 70 %) е установен ясно изразен градиент на разпределение на деформацията по напречното сечение, фиг. 10.

В осевата зона (0–35 % от радиуса) нивото на деформация достига  $\sim 9,5$ .

В периферната зона (35–80 % от радиуса) - 19,5–21,5.

В повърхностните слоеве (80–100 %) - до 29–30.

По този начин повърхността е подложена на максимална обработване, което допринася за интензивно раздробяване на структурата и формиране на ултрафинозърнесто състояние. В същото време в центъра се запазва по-ниско ниво на деформация, формирайки градиентна структура.

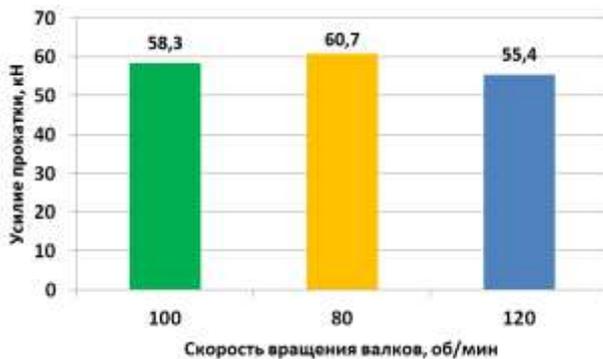
Такъв характер на разпределение на деформацията може лесно да се обясни с помощта на изображението на векторите на посоката на изтичане на метала (Фиг. 11). От надлъжното сечение на детайла ясно се вижда, че в повърхностните слоеве на заготовките при радиално-срязващото валцуване се създава вихров характер на изтичане на метала, което допринася за модификацията на микроструктурата, придавайки ѝ равноосна форма и раздробявайки я до ултрафинозърнен размер.

Оптимизацията показва, че:

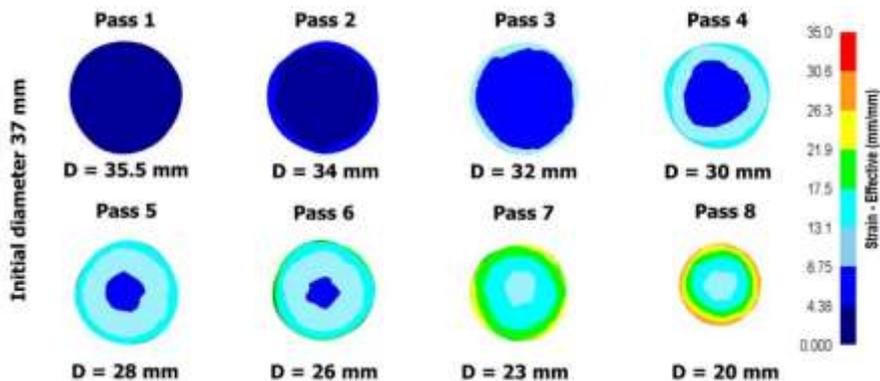
- най-рационалната стратегия е използването на малка абсолютна деформация в първите проходи.
- намаляването на температурата на преддеформационно нагряване на метала под 530 °C е недопустимо поради увеличаване на силата на валцуване, а повишаването на температурата - води до рекристализация.
- скоростта на валцуване оказва второстепенно влияние и са допустими вариации около номиналната стойност.
- образува се характерна градиентна структура по сечение на пръта: максимална деформация на повърхността на метала и по-меки условия в центъра.
- във всички случаи силата на деформация не надвишава технологичния лимит, което потвърждава надеждността на процеса.

#### **2.4 Компютърно моделиране и експериментално изследване на технологията равноканално ъглово пресуване като референтен метод**

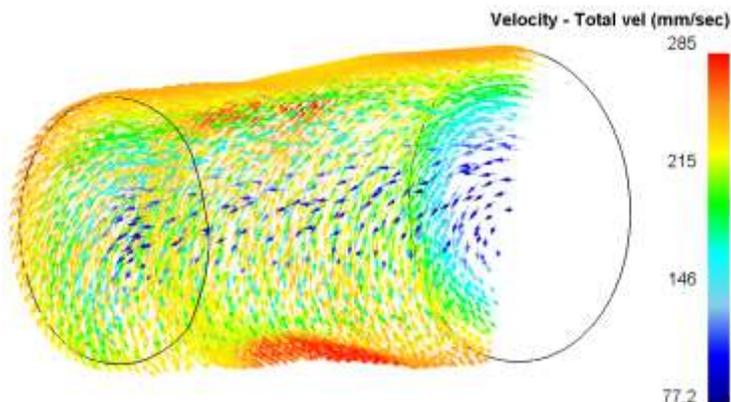
Като референтен метод за интензивна пластична деформация за сравнение с радиално-срязващото валцуване беше избран методът на равноканално ъглово пресуване. Неговото използване позволи да се сравни ефективността на формирането на ултрафинозърнена структура и степента на деформация на лятата структура на циркониева сплав E110. За разлика от радиално-срязващото валцуване, равноканалното ъглово пресуване осигурява равномерни срязващи деформации по цялото сечение, което спомага за отстраняването на обемни дефекти и повишава еднородността на материала.



Фиг. 9. Сила на валцуване при различни скорости на въртене на валците при валцуване



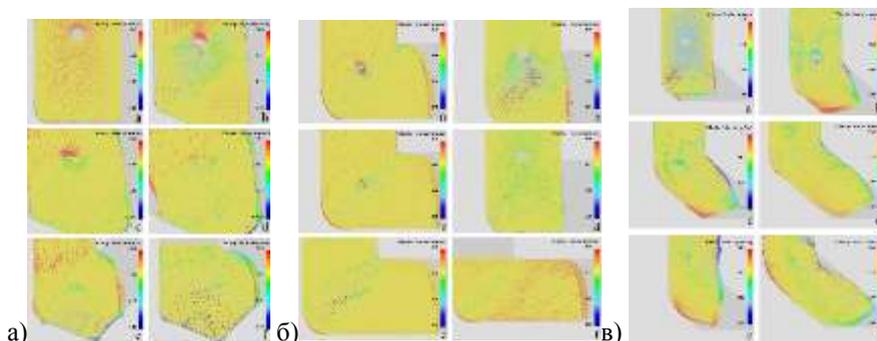
Фиг. 10. Еквивалентна деформация след последователно радиално-срязващо валцуване на прът с диаметър от 37 mm до 20 mm



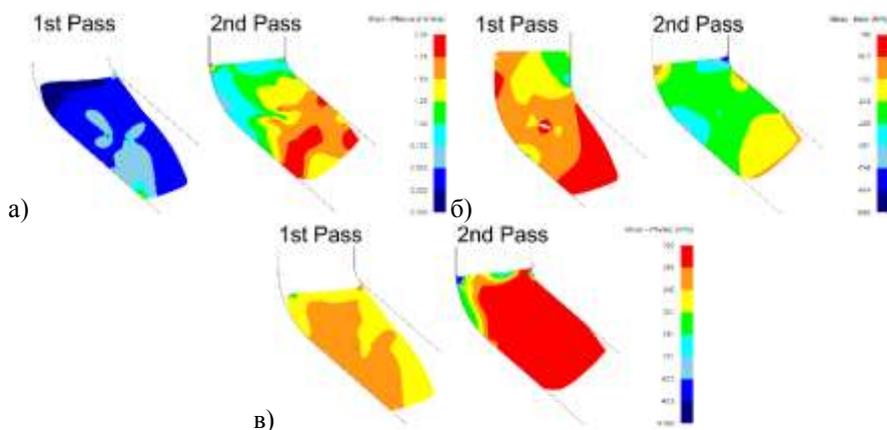
Фиг. 11. Характер на изтичане на метала при радиално-срязващо валцуване

Моделирането на процесите, протичащи при равноканално ъглово пресуване с различни ъгли на пресичане на каналите ( $45^\circ$ ,  $90^\circ$  и  $135^\circ$ ) показва, че намаляването на ъгъла води до увеличаване на интензивността на деформацията и ускорява затварянето на проходните дефекти. За по-нататъшна проверка беше избрана матрица с ъгъл  $135^\circ$  - като най-неблагоприятен случай. Дори при тези условия, дефектът беше успешно затворен, което потвърждава високата ефективност на метода, фиг. 12.

При равноканалното ъглово пресуване, разпределението на деформацията и напрегнатото състояние показва, че след няколко прохода се образува зона на интензивна пластична деформация, обхващаща цялото сечение на заготовката, като централната зона получава значително по-висока степен на деформация в сравнение с радиално-срязващото валцуване, Фиг. 13. Установено е, че по време на деформацията се реализира предимно натисково напрегнато състояние, което спомага за отстраняването на леярските дефекти.



Фиг. 12. Стадии на закриване на проходен дефект в модели с ъгъл на съединение на каналите на матрицата а)  $45^\circ$  б)  $90^\circ$  в)  $135^\circ$



Фиг. 13. Разпределение в надлъжна посока на метала в зоната на деформация на: а) ефективната деформация; б) средното напрежение; в) ефективното напрежение

По време на този етап беше потвърдена ефективността на равноканалното ъглово пресуване като метод за начално обработване на малки циркониеви блокове с цел отстраняване на дефекти и получаване на УФЗ-структура. Приложението му обаче е ограничено от размерите на заготовките и необходимостта от няколко преминавания, което прави този метод допълнение, а не заместител на радиално-срязващото валцуване при промишлената обработка на циркониеви сплави.

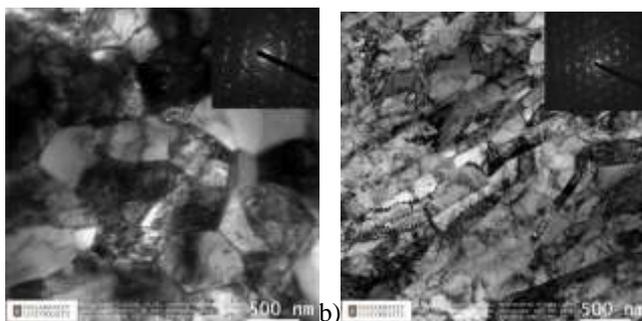
### **3. Изследване на структурата и свойствата на ултрафинозърнен цирконий, получен чрез методи на интензивна пластична деформация**

#### **3.1. Предварително експериментално валцуване на циркониева сплав E110 по метода на радиално-срязващо валцуване**

Експерименталното радиално-срязващо валцуване беше проведено върху сплав E110, промишлено произведена под формата на прът с диаметър 35 mm, чрез горешо пресуване при 650 °C. Изходният материал се характеризира с граница на якост 470 МПа, граница на провлачане 348 МПа и относително удължение 34%. Валцуването на стан СВП-08 се извърши при температура на нагриване 530°C, която се контролираше с термовизионна камера. Процесът се извърши при гранични режими с поетапна абсолютна деформация по диаметъра на пръта от 1,5 до 3 mm до достигане на минимален технологичен диаметър 20 mm. По време на деформацията се установи локално повишаване на температурата до 150 °C, което показва протичането на интензивни срязващи деформационни процеси.

За осъществяване на микроструктурни изследвания, прътът беше разделен на сегменти, от които бяха подготвени проби за трансмисионна електронна микроскопия (ТЕМ). Изследванията на ТЕМ JEM-1400Plus показаха образуване в периферната зона на равноосни дислоцирани зърна с размер 500–1000 nm без изразена текстура, което съответства на ултрафинозърнесто състояние, Фиг.14. В централната зона се наблюдава смес от удължени, силно деформирани зърна с ширина около 100 nm и дължина до 10  $\mu$ m, както и отделни големи зърна, сравними с изходните. Електронната дифракция потвърди наличието на преобладаваща ориентация, свързана с посоката на валцуване.

Получените резултати потвърдиха принципната възможност за формиране на УФЗ-структура в сплав E110 чрез метода на радиално-срязващото валцуване. Експериментът позволи също така да се отработят практическите аспекти на провеждането на деформация при гранични режими и подготовката на проби за последващ комплексен анализ.



Фиг.14. Микроструктура на Zr-1%Nb сплав (E110) след радиално-срязващо валцуване (x15000): а – периферната област на пръта, б – централната зона на пръта

### 3.2 Образци, получени чрез радиално-срязващо валцуване за анализ на еволюцията на структурата

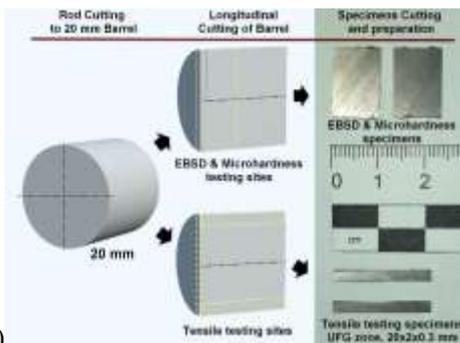
Следващият етап от изследването е идентифицирането на различни типове структури, което наложи уточняване на дебелината и хомогенността на УФЗ-зоната, както и анализ на градиента на структурата и текстурата.

За решаването на тази задача беше проведена серия от валцувания на пет пръта с различен диаметър (30, 25, 20 мм, както и допълнително валцувани до 15 и 13 мм). Това позволи да се получи материал за изучаване на междинните етапи на формиране на УФЗ-структура. За разлика от предишния експеримент, акцентът е поставен не само върху доказването на принципната възможност, но и върху проследяването на еволюцията на УФЗ-слой и неговите характеристики. Беше разработена методика за подготовка на пробите, включваща прецизно разрязване на пробите, електролитно полиране с охлаждане на електролита и оптимизиране на режимите на ецване.

Разширената серия експерименти и комбинираният метод на анализ позволиха да се премине от първоначалното потвърждение на възможността за получаване на УФЗ-структура към комплексно изследване на нейното формиране, граници и стабилност.



а)



б)

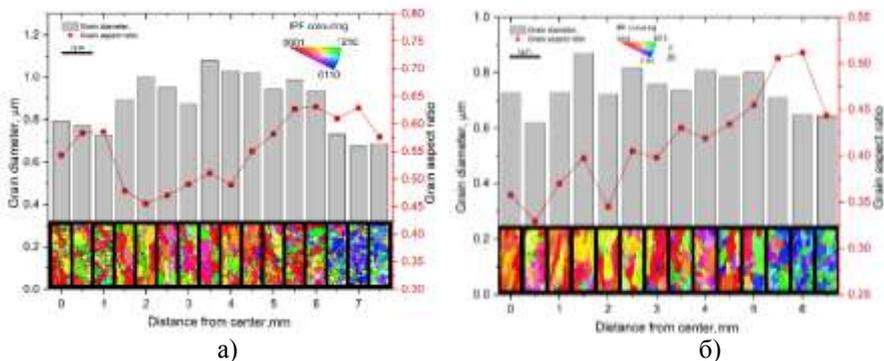
Фиг.15. а) Валцувани пръти от Zr-1%Nb сплав; б) Схема на разрязване на образца за различни видове анализ

### 3.3 EBSD картиране на образците с висока степен на детайлност

За количествена оценка на еволюцията на зърнената структура след радиално-срязващо валцуване е използван методът EBSD. Картите са заснети по радиуса на пръта със стъпка 0,5 mm при увеличение  $\times 8000$ , стъпка на сканиране 20 nm и размер на областта  $50 \times 50 \mu\text{m}$ . На всяка карта са регистрирани от 60 до 100 зърна, което осигурява статистическа достоверност на данните. Общо са получени над 100 карти, обработени в софтуера HKL Tango. Като базова характеристика на микроструктурата е избрана средната площ на зърното, по която са построени разпределенията по радиуса на пръта.

Анализът показва, че в изходния образец средният диаметър на зърното е бил около 4  $\mu\text{m}$ . Вече след първата фаза на валцуване (до 30 mm) размерът на зърното е намалял до 1,0–1,2  $\mu\text{m}$  в централната част и до 0,7  $\mu\text{m}$  в периферната зона. На всички следващи етапи на валцуване (25–13 mm) раздробяването на зърната започваше в повърхностните области и се разпространяваше в дълбочина, образувайки устойчив ултрафин слой с дебелина около 2 mm и диаметър на зърното 0,6–0,7  $\mu\text{m}$ . В централните области зърното намалява по-бавно, достигайки субмикронни стойности едва след значителни абсолютни деформации.

Освен това е установен градиент както по размер на зърното, така и по неговата форма. Диаметърът на зърното намалява към повърхността, с нарастване на съотношението на диаметрите на пръта след съответното валцуване и рязко намалява на дълбочина 1–1,5 mm. IPF-картите показаха промяна в ориентацията на зърната с намаляване на диаметъра на прътите, което показва формирането на специфичен текстурен градиент. EBSD картите и графиките на разпределението на средния диаметър на зърното и съотношението на размерите по напречното сечение на заготовките 15 и 13 mm са показани на фиг. 16.



Фиг.16. EBSD карти и графики на разпределението на средния диаметър на зърното и съотношението на размерите по сечение на заготовката:

а) 15 mm; б) 13 mm.

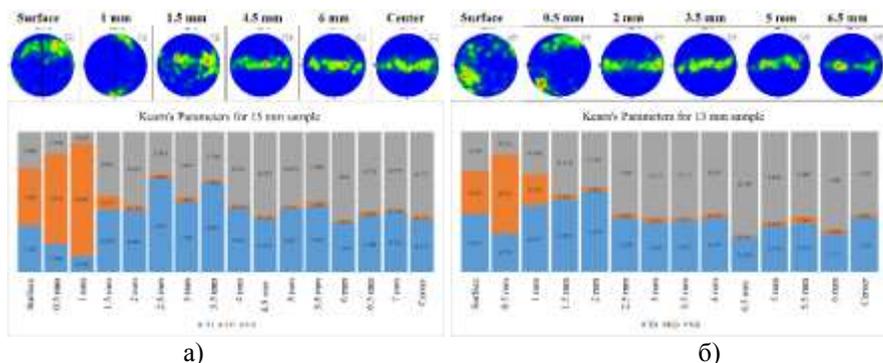
### 3.4 Анализ на еволюцията на текстурата в процеса на валцуване

Анализът на текстурата на циркониевите пръти след радиално-срязващо валцуване беше проведен с използване на коефициентите на Кернс, изчислени по EBSD-данни. В изходния отгрят образец се наблюдава слабоизразена остатъчна текстура: стойностите на  $f$ -параметъра в осева посока бяха средно 0,260, което е по-ниско от нормалната (0,379) и напречната (0,361) посоки.

След валцуване до 30 mm се появява ясна текстурна компонента, характерна за циркония:  $f$ -параметрите в напречно и нормално направление достигнаха 0,500–0,540, докато в посоката на валцуване средната стойност беше 0,046; в повърхностната зона се наблюдава локално повишаване до 0,112.

С по-нататъшното намаляване на диаметъра до 25 и 20 mm (в следващите проходи на валцуване) се наблюдава увеличение на стойностите на  $f$ -параметъра в посока на валцуване в повърхностните слоеве (до 0,171 и 0,195 съответно), въпреки че средните стойности оставаха ниски (0,041 и 0,039). Максимални промени бяха установени в пробата с диаметър 15 mm, където на дълбочина 1 mm  $f$ -параметърът достигна 0,805, постепенно намалявайки до 0,406 на повърхността. При валцуване до 13 mm стойностите на параметъра намаляват още, а разпределението е остава неравномерно. Полевите фигури и разпределението на параметъра на Кернс за пробите с диаметър 13 и 15 mm са показани на фигура 17.

Така, при валцуване, с намаляването на диаметъра от 35 до 15 mm се наблюдава увеличаване на текстурата в посоката на валцуване, което е свързано с развитието на интензивни срязващи деформации. При по-нататъшно намаляване до 13 mm се фиксира частично отслабване и нестабилност на текстурата, което показва насищане или промяна на механизма на деформация. Дебелината на повърхностния слой с повишени стойности на  $f$ -параметъра намалява от 2,5 mm (при 30 mm) до 1 mm (при 13 mm). Получените резултати съответстват на вихровия характер на изтичането на метала, установен при FEM-моделирането.



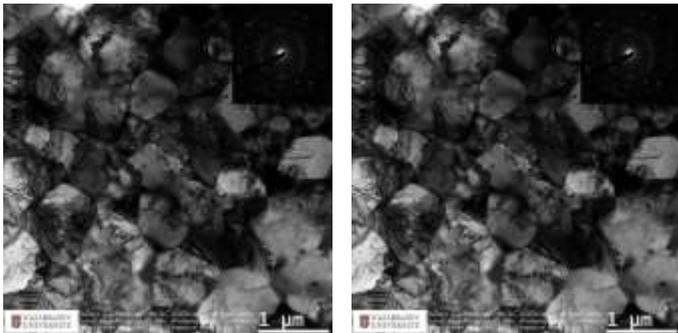
Фиг. 17. Полеви фигури и разпределение на параметра на Кернс за образци: а) 15 mm; б) 13 mm.

### 3.5 ТЕМ изследване на тънката структура на валцувания цирконий

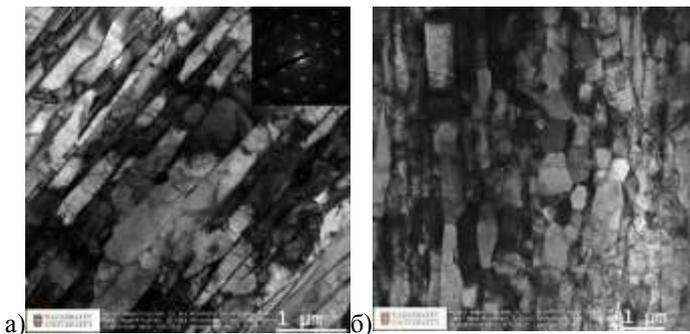
За подробен анализ на микроструктурните дефекти в характерните зони на пръта бяха проведени изследвания с помощта на трансмисионна електронна микроскопия (ТЕМ). Бяха избрани участъци с различно състояние на структурата: периферни зони с ултрафинозърнесто състояние и централни зони с изразена деформационна (валцувана) текстура, Фиг.18 и 19. Като обекти на анализ бяха използвани проби от пръти, валцувани до диаметри 15 и 20 mm.

Изследванията показаха, че структурата на централната зона се намира в състояние на активна промяна под въздействието на високи деформации и вихрово течение на метала. Установено е раздробяване и завъртане на удължени текстурни зърна, както и отделни случаи на тяхното уедряване и обединяване, което е свързано с елементи на динамична рекристализация. Особеност е клъстерният характер на преустройството: формират се области от зърна с близка ориентация, отделени с по-високи ъгли на дезориентация от съседните клъстери. В периферните области структурата е стабилна и типична за УФЗ-състоянието: наблюдават се наситени с дислокации субмикронни зърна с развита система междузърнени дислокации.

Тези данни са в добро съгласие с известни от литературата резултати за УФЗ-материали, получени чрез други по-енергоемки методи.



Фиг. 18. ТЕМ снимки на повърхностната зона на пръта



Фиг. 19. ТЕМ снимки а)осева зона; б) преходна зона на пръта.

### **3.6 Изследване на механичните свойства на валцуваните циркониеви образци**

За оценка на механичните свойства на валцуваните образци са проведени измервания на микротвърдостта по Викерс със стъпка от 0,5 mm по радиуса на пръта, както и изпитвания на опън в три характерни зони – периферна, централна и междинна ( $\frac{1}{2}$  радиус).

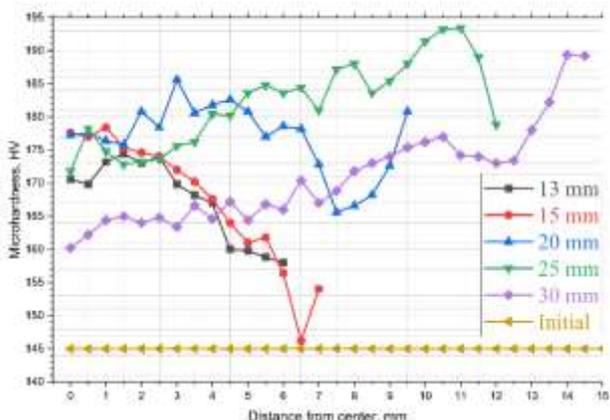
Профилите на микротвърдостта показаха разлики между прътите с диаметър 20 и 15 mm. И в двата случая стойностите бяха в диапазона HV150–190, като в центъра бяха регистрирани по-високи стойности в сравнение с повърхностните слоеве (разликата е 30–40 единици). За пръта с диаметър 15 mm намаляването на микротвърдостта по периферията беше по-изразено. Такъв характер на разпределението е свързан с динамичното разякчаване и възможните процеси на полигонизация или рекристализация в повърхностните слоеве, причинени от комбинацията на температурата на валцуване (~500 °C) и деформационното нагряване (до 200 °C).

Изпитванията на опън са проведени за образец с диаметър 15 mm, от който са изрязани тънки надлъжни ленти, което е позволява да се определят свойствата на отделните зони. Периферните области се характеризират с малко по-ниски стойности на границата на провлачане, якостта и относителното удължение, което се дължи на натрупването на дефекти и динамичното разякчаване. Въпреки това границата на якост в тази зона достигаше ~540 MPa, което значително надвишава началните характеристики и изискванията към материалите за топлопроводни елементи. Образците от централната и междинната зони показаха сходни криви на деформация, с незначително повишение на якостта в централната част. Графиките са показани на Фиг. 20. Графиките на опън по зони за прът с диаметър 15 mm са показани на Фиг. 21.

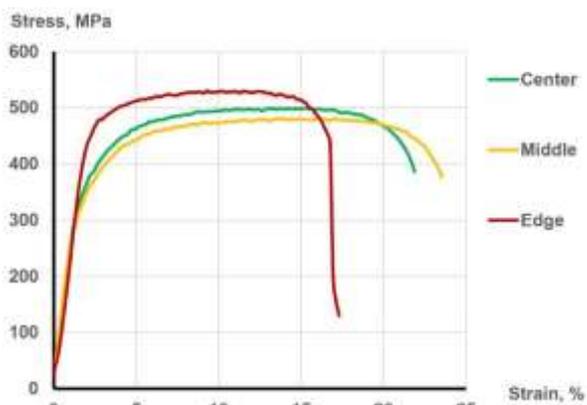
### **3.7 Експериментално обработване на циркониевите пръти (заготовки) чрез метода Равноканално ъглово пресуване РКЪП**

За експериментална верификация на гореописания модел, получен чрез интензивна пластична деформация, а именно радиално-срязващо валцуване беше избран друг метод за интензивна пластична деформация – равноканално ъглово пресуване, при това, беше избран вариант с ъгъл на съединение на каналите 135°, който представлява най-голяма сложност за затваряне на дефекти. Матрица с канал 30 × 24 mm от инструментална стомана беше подготвена с полирани стени и графитна смазка за намаляване на триенето по време на пресуване. Заготовките бяха нагreti до 530 °C, а матрицата – до ~200 °C, което позволи да се намалят температурните градиенти и да се предотвратят дефекти. Пресуването се извърши на хидравличен преса със сила на пресуване до 1500 kN при скорост 5–10 mm/sec.

Експериментът предвиждаше два цикъла ссе завъртане на заготовката на 180° между циклите за равномерно разпределение на деформацията. При провеждането на втория цикъл обаче възникнаха технологични затруднения. Поради частичната загуба на температура на заготовката съпротивлението на деформацията се увеличи, което доведе до увеличаване на натоварването и



Фиг. 20. Промяна в микротвърдостта по сечението на всеки един от валцуваните образци



Фиг. 21. Изпитвания на опън в различните зони на образца, валцуван до диаметър 15 mm

намаляване на твърдостта на работната част на матрицата. В резултат на това се наблюдаваше заклещване на заготовката и пуансона, което ограничи броя на успешните проходи до максимум два.

### 3.8 Изследване на структурата и свойствата на циркония, получен чрез равноканално ъглово пресуване (РКЪП)

Металографският и EBSD-анализ показаха, че след първия проход на равноканално ъглово пресуване структурата на сплав E110 запазва относително едри зърна (средният размер е  $\sim 2,6 \mu\text{m}$ , като отделни зърна достигат до  $15 \mu\text{m}$ ), но вече се наблюдават промени във формата, което свидетелства за началото на процесите на раздробяване на зърната. След

втория проход се наблюдава значително раздробяване на зърната: средният еквивалентен диаметър на зърното е намалял до  $\sim 1,7 \mu\text{m}$ , с диапазон 0,5–11  $\mu\text{m}$ . При това се запазва висока нехомогенност в разпределението на размерите на зърното, а на IPF-картите се забелязва началото на формирането на текстура. EBSD карти на структурата и полеви фигури за първия и втория проход на равноканално ъглово пресуване са показани на Фиг. 22 и 23.

Измерванията на микротвърдостта показаха увеличаване на този параметър от 145 HV (начално състояние) до 158,9 HV след първия проход и 171,5 HV след втория. Уякчаването е свързано с натрупване на дислокации, раздробяване на зърното и локални процеси на динамична рекристализация.

#### **4. Изследване на възможностите за обработка на циркониеви слитъци чрез методи за интензивна пластична деформация.**

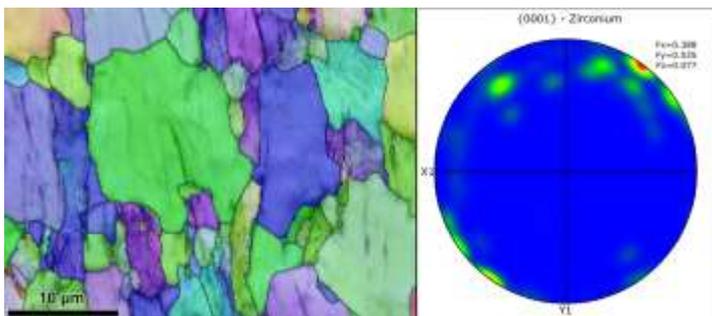
##### **4.1. Изследване на обработката на цирконий с лята структура чрез метода радиално-срязващо валцуване**

На този етап се разглежда възможността за прилагане на радиално-срязващо валцуване за обработване чрез интензивна пластична деформация на слитъци от претопена циркониева сплав E110 (Zr-1%Nb). Основно внимание е насочено към оценка на ефективността на този метод като инструмент за отстраняване на леярски дефекти, трансформация на крехката леярска структура в пластична и последващо формиране на ултрафинозърнесто състояние на материала. За изследването е използван слитък, получен във вакуумна индукционна пещ (Фиг. 24).

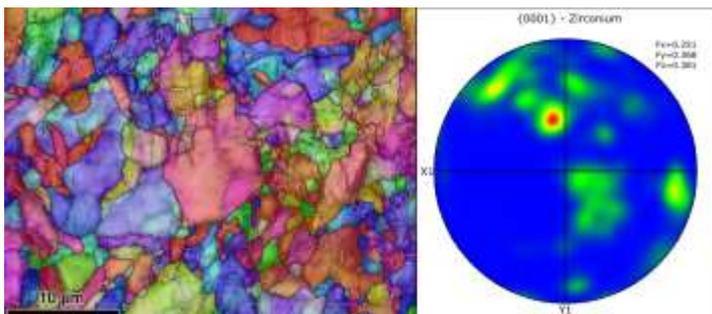
Химичният анализ потвърди съответствието на състава с изходния сплав, което гарантира коректността на по-нататъшните експерименти. Валцуването е проведено на стан РСР-10/30 в два етапа, Фиг. 25. На първия етап, при температура 800 °C и големи единични абсолютни деформации, е осъществено интензивно уплътняване на структурата и заваряване на дефектите. На втория етап, при температура 530 °C и малки стъпки на деформация, е осъществено значително раздробяване на зърното, което съответства на условията за получаване на ултрафинозърнена структура, потвърдени по-рано в литературни източници. Контролът на температурата по време на валцуването е осъществен с помощта на термовизор в реално време, което осигурява точност при възпроизвеждането на зададените параметри на обработване.

##### **4.2 Изследване на структурата и леярските дефекти на слитъка след радиално-срязващо валцуване**

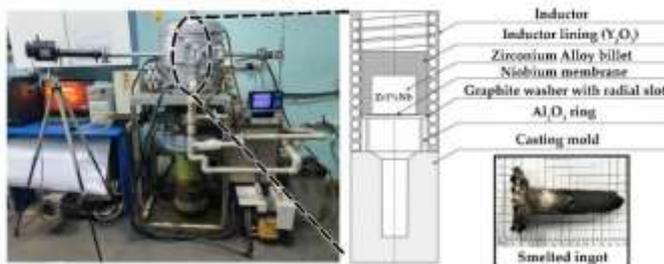
Изследването на структурата на летите образци след радиално-срязващо валцуване беше проведено по същите протоколи, използвани за предишния експеримент при валцуване. На първия етап, проведен при температура 800 °C с намаляване на диаметъра на заготовката от 30 на 20 mm, беше установено изразено раздробяване на зърнестата структура на повърхността на пръта. Според данните от EBSD-анализа, Фиг. 26, в близост до периферията се наблюдава интензивно формиране на структурата и образуване на дребни зърна, докато в централната част се запазват елементи от леярската или



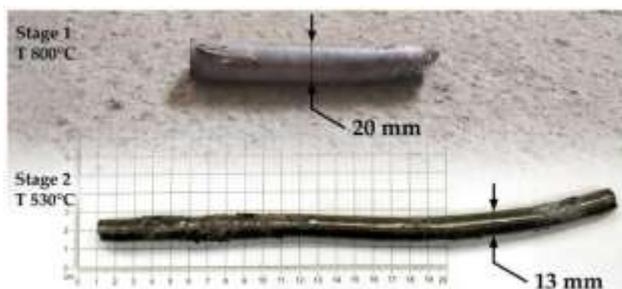
Фиг. 22. EBSD карта на циркония след първия проход на пресуване



Фиг. 23. - EBSD карта на циркония след втория проход на пресуване



Фиг. 24. Схема на вакуумна индукционна пещ за топене



Фиг. 25. Заготовки след всеки един етап на радиално-срязващо валцуване

преходната структура, което свидетелства за по-малка интензивност на деформацията. Фазовият анализ потвърди наличието на  $\alpha$ -фаза на цирконий, като в близост до повърхността бяха регистрирани остатъчни области на  $\beta$ -фаза. Кристалографската текстура демонстрира ясно изразена анизотропия в периферията и слаба ориентация в централната зона.

Втория етап на валцуването е проведен при температура 530 °C с последователно намаляване на диаметъра на пръта до 13 мм. Микроструктурният анализ (Фиг. 27) показва, че в повърхностните слоеве зърната са достигнали субмикронни размери в резултат на интензивна пластична деформация и процеси на динамична рекристализация. В централната част са се запазили удължени зърна по посоката на валцуване, но дори и там структурата се оказва значително раздробена в сравнение с изходното състояние. Фазовият състав се характеризира с практически пълнен преход в  $\alpha$ -фаза, което се дължи на нестабилността на  $\beta$ -фазата при избраните температурни условия. Анализът на текстурата показва изразена анизотропия на повърхността и по-слаба в централната зона, което потвърждава преразпределението на ориентацията на зърната под въздействието на деформацията.

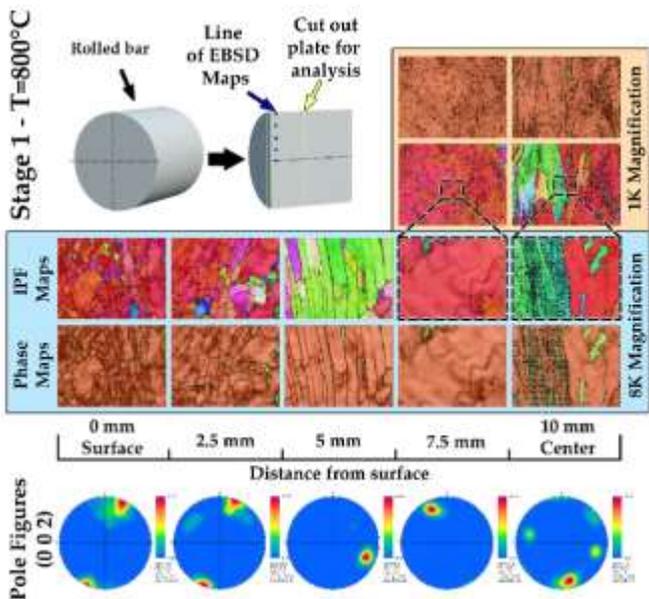
Отделно внимание е отделено на анализа на кухината на свиване, която изначално присъства в отлятия слитък. След радиално-срязващото валцуване тя се запазва като остатъчен вътрешен дефект със звездообразна форма с радиални пукнатини. Въпреки общото намаляване на размерите на кухината, пропорционално на коефициента на абсолютна деформация, пълното заваряване на дефекта не е постигнато. Това свидетелства за недостатъчност на пластичната деформация за отстраняване на леярската кухина на свиване при избраните режими на обработване (Фиг. 28).

Така резултатите показват, че радиално-срязващото валцуване осигурява интензивно раздробяване на зърнестата структура и фазова стабилизация на  $\alpha$ -фазата на циркония, но не гарантира пълното отстраняване на големи леярски дефекти, което трябва да се има предвид при практическото приложение на метода.

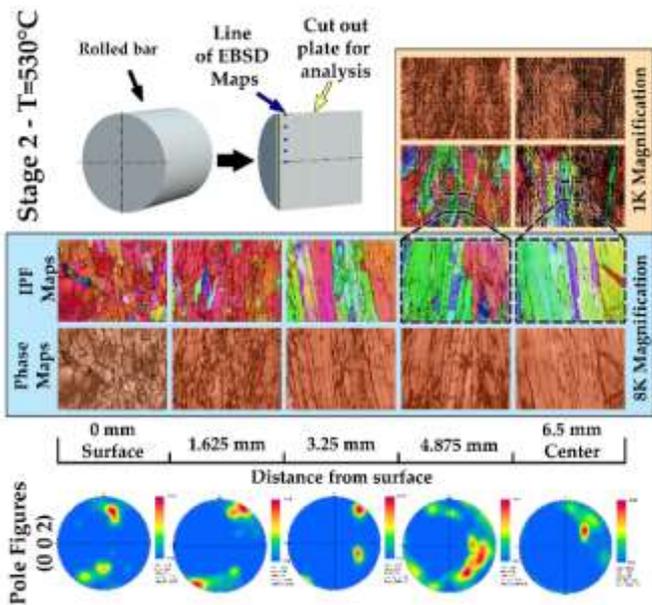
#### **4.3 Изследвания на затварянето на леярски дефекти чрез равноканално-ъглово пресуване (РКЪП)**

Проведена е експериментална проверка на потенциала на равноканалното ъглово пресуване при затваряне на леярски дефекти в циркониеви сплави. Тъй като не беше възможно да се получи достатъчно количество отлят материал с естествени дефекти, в работата беше проведено моделиране на дефекта чрез пробиване на отвор с диаметър 5 mm в заготовки от циркониева сплав. Размерът на дефекта беше избран въз основа на данни от предишни изследвания, проведени при коване и радиално-срязващо валцуване.

След първото преминаване през матрицата дефектът претърпя само частична промяна на формата: той се уплътни по вертикала и се удължи по посоката на деформацията, но краищата на кухината не се съединиха напълно, което показва недостатъчна интензивност на натрупаните деформации.



Фиг. 26. EBSD анализ след първия етап на обработване на циркониевия слитък чрез радиално-срязващо валцуване до 20 mm



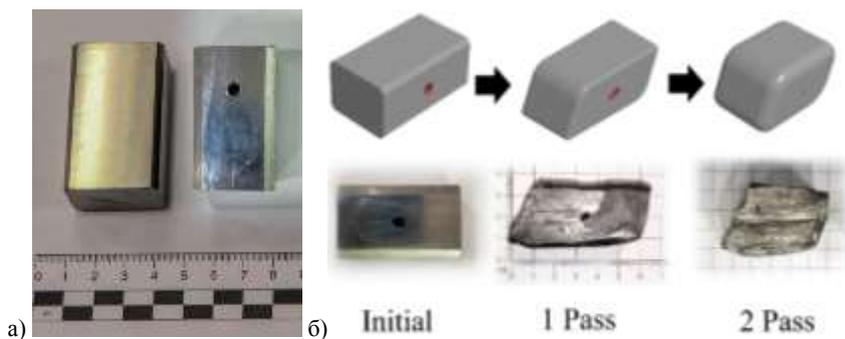
Фиг. 27 – EBSD анализ след втория етап на обработване циркониевия слитък чрез радиално-срязващо валцуване до 13 mm

Вторият проход с завъртане на заготовката на  $180^\circ$  осигурява почти пълно отстраняване на макродефекта, който е станал невидим визуално. При подробен анализ обаче е открита остатъчна пукнатина с ширина  $10\text{--}25\ \mu\text{m}$ , минаваща по дължината на бившата кухина. Дефектът значително се е намалил по размер благодарение на повишената степен на деформация и частичното заваряване на краищата на метала, но не е бил напълно отстранен. Външният вид на изходния образец и процесът на затваряне на дефекта по време на пресуването са показани на Фиг. 29.

Наличието на остатъчен дефект се обяснява както с ограничените температури на процеса РКЪП, така и с възможното окисляване на повърхността в зоната на кухината, което пречи на пълното заваряване на метала. За окончателно отстраняване на дефекти от този тип може да се наложи допълнително термично обработване или оптимизиране на параметрите на деформация, включително увеличаване на броя на проходите или намаляване на ъгъла на пресичане на каналите на матрицата. По резултатите от проведения експеримент може да се заключи, че равноканалното ъглово пресуване е ефективен метод за намаляване на размерите на големи леярски дефекти в циркониевите сплави. Въпреки запазването на остатъчна пукнатина, получените резултати показват перспективността на този метод за практическо преработване на лети заготовки и последващо подобряване на техните експлоатационни характеристики.



Фиг. 28. Парчета от валцувания слитък с кухина на свиване



Фиг. 29. Външен вид на изходния образец (а) и процес на затваряне на дефекта в процеса на равноканално ъглово пресуване (б)

## **5. Изследване на влиянието на температурата върху стабилността на структурата и механичните свойства на УФЗ-циркониева сплав**

### **5.1 Изследване на влиянието на отгряването при различни температури върху получените структура и свойства**

Изследването на влиянието на температурата върху структурата и механичните свойства е от решаващо значение, тъй като ядрените реактори работят при високи температури и налягания. В тази връзка, за характеризация на работата на УФЗ цирконии, беше решено да се проведат тестове при три повишени температури.

За експеримента бяха избрани три характерни температурни точки: работната температура на повечето реактори (380°C), температурата на рекристализация на сплавта E110 (580°C) и температурата при авария по сценария LOCA (1000°C). Бяха изрязани пластини надлъжно на прът с диаметър 15 mm, в местата в наечно сечение на пръта, където е наблюдавана най-развита УФЗ зона. Пластините бяха отгряти при трите избрани температури в среда с високочист аргон, последвано от EBSD анализ.

Резултатите показаха, че при 380°C, след два часа задържане при тази температура, структурата остава практически непроменена, което показва стабилността на УФЗ състояние при работните условия на реактора. При 580°C се наблюдават бързи процеси на рекристализация: само след 30 минути зърната са нараснали 2-3 пъти по-големи и в централните области се появяват големи равноосни зърна. С увеличаване на времето на задържане, структурата става равномерно едрозърнеста и при 90-120 минути достига стабилно отгрято състояние. Отгряването при 1000°C в продължение на 2 часа води до пълна рекристализация и образуване на типична Видманщетенцова структура.

Изпитванията за определяне на микротвърдостта потвърдиха микроструктурните промени. При проби, отгряти при 380°C, беше регистрирано само леко намаление на твърдостта, без промяна в профила на разпределение, поради релаксация на вътрешните напрежения. При 580°C се наблюдава значителен спад на микротвърдостта, като профилът се изравнява по цялото напречно сечение, особено след отгряване за повече от 60 минути, когато разликите между кривите стават минимални. При 1000°C микротвърдостта беше дори по-ниска, отколкото след продължително отгряване при 580°C, което се обяснява с пълна рекристализация и допълнително уедряване на зърнестата структура.

По този начин, изследването демонстрира високата стабилност на ултрафинозърнестата структура на получените пръти от циркониева сплав при работни температури на реактора и интензивното ѝ разграждане при условия, съответстващи на температурата на рекристализация и аварийно нагряване. Тези резултати са важни за разбирането на границите на годност на ултрафинозърнестия цирконий в приложенията на ядрената енергетика.

## **5.2. Изследване на стабилността на механичните свойства при различни температури**

Изпитванията на опън при повишени температури бяха проведени върху тънки пластини, изрязани от три характерни зони на напречното сечение на прът с диаметър 15 mm с ултрафинозърнеста структура. Използваната методологията на изпитване при повишени температури е стандартна, като изпитванията са проведени при избраните три температури от 380°C, 580°C и 1000°C. Изпитването на опън е проведено при трите избрани температури като образците се нагряват до избраната температура, в защитна атмосфера в термокамерата на изпитвателната машина, задържат се 2 часа при съответната температура, след което се провежда изпитването на опън.

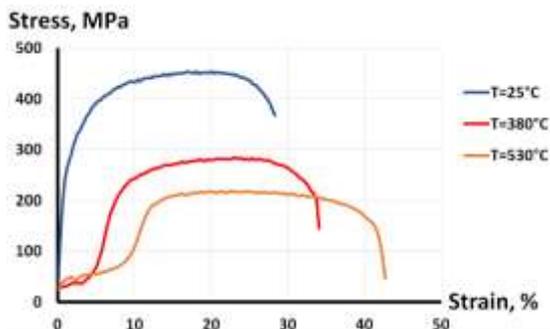
Резултатите показаха, че при 380°C се наблюдава само леко намаляване на механичните свойства по цялото напречно сечение на материала, което потвърждава стабилността на структурата при работни условия на реактора. При 580°C свойствата се изравняват, със значително намаляване на якостта на опън и леко увеличение на удължението. Изпитванията при 1000°C разкриха изключително ниска якост и забележимо увеличение на пластичността, свързано с пълна рекристализация и удебеляване на зърнестата структура. Графиките на изпитванията на опън при различни температури за оригиналната проба и УФЗ зоната са показани на Фиг. 30 и 31.

Всички получени механични свойства отговарят на изискванията на ASTM B-351 и като цяло превишават тези на конвенционално произведените пръти, особено по отношение на якостта. Относителното удължение  $\delta$  обаче е по-ниско от очакваното за напълно рекристализирано състояние. За подобряване на пластичността е препоръчителна допълнителна термично обработване за завършване на процеса на рекристализация. Според данните за микротвърдост, отгряването при 580°C за 90 минути осигурява еднородност на структурата и свойствата по цялото напречно сечение на пръта, въпреки че е съпроводено с уедряване на зърната.

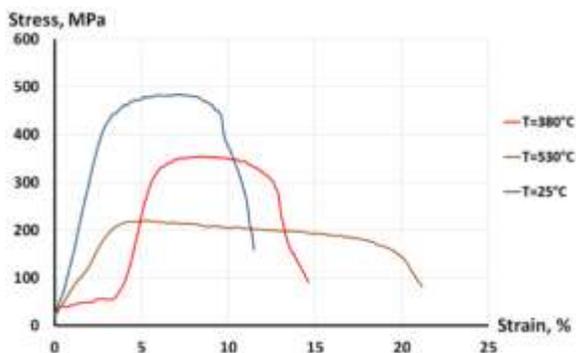
## **6 Облъчване с тежки йони на УФЗ-цирконий с цел моделиране на повредите от отломки в резултат от делене на ядрено гориво и определяне на пригодността на материала за използване в ядрени реактори**

### **6.1 Програма за изпитване на получения материал в ускорителя.**

В изследването е проведено моделиране на радиационни увреждания на ултрафинозърнест цирконий марка E110 с използване на тежки йони в ускорителния комплекс ДЦ-60, намиращ се във филиала на Института по ядрена физика в Астана. Облъчването с йони на криптоний  $^{86}\text{Kr}^{15+}$  с енергия 17,1 keV и различни дози на облъчване ( $5.10^{13}$ ,  $5.10^{14}$  и  $5.10^{15}$  йона/см<sup>2</sup>) позволи да се възпроизведат каскади от измествания, аналогични на повредите от неутронно въздействие, като при това се изключи индуцираната активност на материала. Методиката осигури натрупване на високи дози за кратко време и възможност за контролирано променяне на условията на облъчване.



Фиг. 30. Изпитвания на опън на изходния образец при различни температури



Фиг. 31. Изпитвания на опън на образци от УФЗ зона при различни температури

За експериментите бяха използвани образци под формата на пластини с дебелина 1 mm, изрязани от пръти с диаметър 15 mm (с УМЗ-структура) и 35 mm (прът с изходна структура). Такава конфигурация позволи да се изследва пълният градиент на микроструктурата, както и да се направи сравнителен анализ на изходното и уякченото състояние. Допълнително бяха подготвени дискове с диаметър 3 mm за анализ чрез ТЕМ на фината структура и два комплекта пластини за EBSD-картографиране, наноиндентирание и измерване на микротвърдостта.

Закрепването на пробите се извърши върху водноохлаждаем държател на мишената в камерата за облъчване на канал №3 на ускорителя, което осигури стабилна температура и равномерност на въздействието, Фиг.32. Контролът на параметрите на лъча показва еднородност на разпределението на плътността на частиците по повърхността не по-лоша от 10%, при максимален ъгъл на влизане на йоните в мишената по-малко от 3°. Изчислената дълбочина на проникване беше около 13  $\mu\text{m}$ , което ограничава зоната на увреждане до повърхностния слой на материала.

Избраният подход позволи да се имитира радиационното въздействие в условия, при които провеждането на експерименти с неутрони е свързано с



Фиг. 32. - Камера за облъчване на канал №3 и държач на мишени на ускорителя ДЦ-60 с монтиран комплект проби

дълги срокове и строги изисквания за работа с радиоактивни проби. Въпреки ограничението по отношение на дълбочината на уврежданията, йонното облъчване в комбинация с методи за локален анализ (наноиндентирание, ТЕМ, EBSD) е ефективен инструмент за изучаване на устойчивостта на микроструктурата и свойствата на конструкционните материали, използвани в реактори.

### **6.2 Изследване на еволюцията на фината структура на УФЗ цирконий след облъчване**

Представени са резултатите от изследване на фината структура на циркониеви проби, облъчени с тежки йони. За анализа са използвани предварително подготвени и картографирани ТЕМ проби, поради невъзможността за последващо приготвяне на тънки фолиа от масивни облъчени заготовки и ограничената възможност за приписване на локалните промени на специфични структурни области. Този подход позволи сравнителен анализ на характерните радиационно-индуцирани промени в ултрафинозърнестите и оригиналните структури.

Изследването разкри, че при максимален доза на облъчване от  $5.10^{14}$  йона/cm<sup>2</sup> се наблюдава сериозно увреждане на тънките области както в ултрафинозърнестия, така и в оригиналния материал. Това се проявява с изчезването на прозрачни зони, промени в геометрията на ръбовете и разрушаване на тънките срезове. При средена доза от  $5.10^{13}$  йона/cm<sup>2</sup> се наблюдава значително намаляване на прозрачните области, увеличаване на дебелината на аморфизирания слой и влошаване на аналитичните условия. В оригиналните проби е регистрирано частично размазване на междузърнените граници поради дефекти, докато УФЗ-материал демонстрира по-стабилно състояние.

При минималното ниво на облъчване ( $5.10^{13}$  йона/cm<sup>2</sup>) не са открити значителни структурни промени: дислокационната мрежа е запазена, въпреки че са наблюдавани известно уплътняване и аморфизация на повърхността. В някои случаи обаче са наблюдавани точкови дефекти, локализирани в близост

до дислокации, в проби с доза на облъчване  $5.10^{13}$  йона/cm<sup>2</sup>, което потвърждава началото на радиационно-индуцирани промени.

Общият вид на тънката област, подготвена за ТЕМ изследване, показва че пробите облъчени с максимална доза от  $5.10^{13}$  йона/cm<sup>2</sup>, както за оригиналния материал, така и за УФЗ са неподходящи за изследване, тъй като цялата тънка област е силно повредена. Това се забелязва не само от визуалната липса на прозрачни области, но и от значителната промяна в геометрията на ръба, водеща до неговото сплескване и отлепване (отпадане) на стърчащи тънки участъци.

### **6.3 Изследване на промените в модула на Юнг чрез наноиндентирание**

Наноиндентиранието беше използвано за оценка на ефекта от облъчването с тежки йони върху механичните свойства на ултрафинозърнест цирконий марка E110. За разлика от традиционните методи за изпитване на твърдост, този подход не се основава на измерване на вдлъбнатината, а на записване на пътя на индентора, което позволява изследване на еластични и непластични материали и допълнително определяне на модула на Юнг. Този метод изисква минимална подготовка на пробата, позволява събирането на голям обем статистически данни и е особено ефективен при изследване на повърхностни слоеве с дебелина само няколко микрона.

Тестовите бяха проведени на апарата TI Premier (Bruker) с индентор на Беркович при натоварване от 10 000  $\mu$ N. За всяка проба бяха оформени пет области по напречното сечение на пръта, всяка от които съдържаеше 25 вдлъбнатини. Анализът на кривите на натоварване и разтоварване е извършен с помощта на метода на Оливър-Фар в софтуерния пакет TriboScan, което позволи да се определи редуцираният модул на еластичност и да се преобразува в модул на Юнг.

Резултатите показват, че стойностите на модула на Юнг систематично се увеличават с увеличаване на дозата на облъчване (фиг. 33). Ясно изразен градиент се запазва и по напречното сечение на пръта (фиг. 34): най-големи промени са регистрирани в централната зона, докато в периферната ултрафинозърнеста област увеличението на модула е по-слабо изразено. При ниски дози се наблюдават атипични флукуации, които могат да се обяснят с процеси на аниhilация на дислокации при слабо облъчване. При по-нататъшно увеличаване на дозата на облъчване, дефектите отново се натрупват, което води до увеличаване на твърдостта на материала.

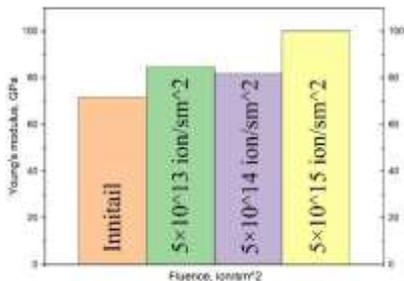
Получените данни потвърждават, че ултрафинозърнестото състояние на циркония се характеризира с по-висока радиационна устойчивост: докато модулът на Юнг се увеличава равномерно по напречното сечение, именно ултрафинозърнестата област показва по-малка чувствителност към натрупване на дефекти в сравнение с оригиналната структура.

### **6.4 Изследвания на промените в микротвърдостта по Викерс (HV).**

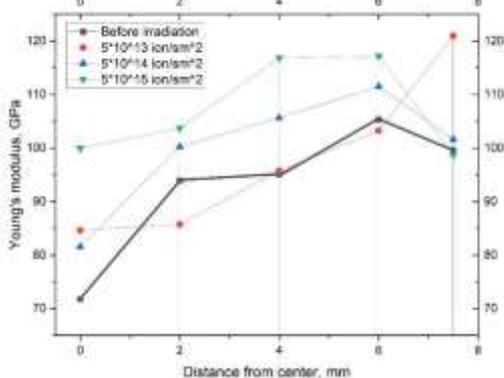
Схемата за провеждане на анализ на микротвърдостта на облъчените проби напълно съответстваше на методологията на наноиндентиранието. Измерванията бяха извършени в пет характерни точки по радиуса на

напречното сечение на пробата, за всяка точка бяха проведени по пет изпитвания, което даде общо 25 измервания на една проба и 100 измервания за цялата серия. Микротвърдостта се определи по метода на Викерс на уреда Shimadzu HNMV-G (Япония) при натоварване HV 0,5 (4,903 Н) и експозиция 5 секунди. Изборът на малко натоварване позволи да се ограничи дълбочината на отпечатъка до дебелината на радиационно увредения слой ( $\approx 13$   $\mu\text{m}$ ).

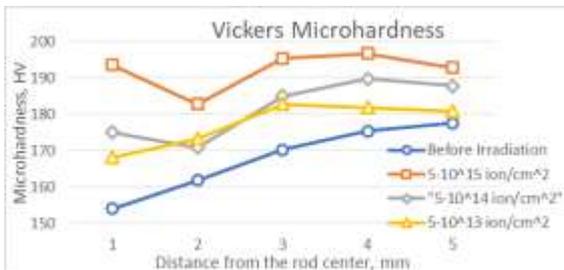
Получените резултати (фиг. 35) показаха пълно съгласие с данните от наноиндентирването: запазва се изразен градиент на свойствата по напречното сечение и се фиксира ръст на микротвърдостта с увеличаване на дозата.



Фиг. 33. Модул на Юнга за УФЗ зона преди и след облъчване



Фиг. 34. Модул на Юнга по сечение на образците



Фиг. 35. Микротвърдост по Викерс (HV) по сечение на пръта

Най-големите промени в свойствата се наблюдават в централната част на пръта, която е претърпяла най-малка степен на пластична деформация при подготовката на материала. В периферната ултраfinoзърнеста област свойствата се променят значително по-слабо, което показва нейната устойчивост към радиационно укрепване.

Количественият анализ показва, че за обичайната деформирана текстура разликата в свойствата е 39 HV (25%), докато за ултраfinoзърнестата структура – само 15 HV (8%). Това свидетелства за значително по-голяма радиационна устойчивост на УФЗ-цирконий и показва неговата перспективност като конструкционен материал, по-малко подложен на радиационно-индуцирано укрепване и съпътстващи деградационни процеси.

### **Заклучение**

В хода на проведеното изследване беше решена приложна научна задача, свързана с разработването и експерименталното валидиране на технологията за формиране на ултраfinoзърнеста (УФЗ) структура в циркониеви сплави с използване на методи за интензивна пластична деформация, в частност радиално-срязващо валцуване (РСВ), с последващ анализ на структурните и експлоатационните характеристики на получения материал. Работата обхваща целия цикъл на изследвания: от обосноваване на научната значимост и актуалност, теоретично моделиране на процесите, разработване на технологични режими до пълномащабни експерименти, комплексни микроструктурни и механични характеристики, както и оценка на радиационната устойчивост на получения материал.

Актуалността на работата се обуславя от необходимостта от повишаване на експлоатационните характеристики на конструкционните материали използвани в активната зона на ядрените реактори, като например: топлопроводни обвивки от циркониеви сплави. Съвременните тенденции в развитието на ядрената енергетика изискват използването на материали, способни да издържат на екстремни експлоатационни условия: високи температури, интензивен неутронен поток, агресивна химична среда и дългогодишна експлоатация. Съществени ограничения на традиционните циркониеви материали са деградацията на свойствата при облъчване, радиационният растеж, пълзене, образуването на крехки хидриди, корозия и образуване на пукнатини.

В рамките на работата е предложено получаването и използването на УФЗ-структура като ефективен подход за подобряване на характеристиките на циркониевите сплави. Обоснована е физическата природа на повишаването на якостните и радиационно-устойчивите характеристики при намаляване размера на зърното до ултраfino ниво. Установено е, че високодисперсната структура спомага за ефективното потискане на радиационно-индуцираните дефекти чрез увеличаване на плътността на границите на зърната и активиране на механизмите за самовъзстановяване на структурата, свързани с миграции на границите на зърната и поглъщане на вакансии.

Ключов елемент на дисертационното изследване е прилагането на метода на радиално-срязващо валцуване (PCB), който притежава уникалната способност да реализира големи пластични деформации с ясно изразени срязващи компоненти и вихрово течение на метала в обема на заготовката. Това осигури не само значително раздробяване на зърното, но и формиране на градиентна структура по напречното сечение на образеца, съчетаваща УФЗ-структура в периферната зона със субмикроструктурна или рекристализирана структура в централната област. Такъв подход позволи да се постигнат повишени механични характеристики при запазване на достатъчна пластичност.

В резултат на проведеното компютърно моделиране с метода на крайните елементи (МКЕ) в програмата DEFORM-3D беше разработен модел на процеса PCB, позволяващ да се анализира напрегнатото и деформационно състояние в заготовката при условия на висока интензивност на деформацията. В хода на изчисленията бяха определени оптималните параметри на валцуване, включващи температура, скорост на въртене на валците, геометрия на работните части и коефициент на триене. Резултатите от моделирането станаха основа за проектирането на експерименталните технологични режими и верификация на модела.

Експерименталната част на работата включва серия от валцувания на циркониеви заготовки (сплав E110) на промишлени инсталации PCP-10/30 и PCP-14/30. Получените образци бяха подложени на комплексен анализ на структурата и свойствата. Електронно-сканиращата микроскопия (SEM/EBSD) и трансмисионната електронна микроскопия (ТЕМ) позволиха да се изследва еволюцията на микроструктурата, да се установи характерът на разпределението на размерите на зърната, типовете граници, наличието на субструктурни елементи и текстурни особености. Установено е, че делът на УФЗ-структурата в напречното сечение на заготовката може да достигне до 35-40% от външния слой, формирайки ясна градиентна морфология. Проведеният анализ на кристалографската текстура с използване на метода EBSD позволи да се определят ориентациите на зърната и да се изчислят параметрите на Кернс, отразяващи степента на анизотропия на материала. Установено е, че в процеса на PCB се формира предимно радиално-базисна текстура, благоприятна от гледна точка на устойчивостта към радиационен растеж. Данните за параметрите на Кернс ( $f_R$  – радиален,  $f_T$  – напречен,  $f_L$  – надлъжен) свидетелстват за близостта на получената текстура до оптималната, подходяща за обвивки в ядрения реактор.

Механичните свойства на образците бяха оценени чрез методите: изпитване при статичен опън и измерване на микротвърдост. Получените стойности за якостта на опън и микротвърдостта показват повече от двукратно повишение на якостта в сравнение с изходния материал, като се запазва достатъчна пластичност. Наблюдава се ясна корелация между локалната микроструктура и твърдостта: зоните с УФЗ-структура демонстрират най-високите стойности.

Важна част от работата беше моделирането на радиационни повреди чрез облъчване с тежки йони на ускорителя ДЦ-60. Тази методология позволява да се възпроизведат ефекти, аналогични на повредите от облъчване с отломки от делене на ядрено гориво. След облъчването беше проведен повторен анализ на микроструктурата и механичните свойства. Установено е, че материалът с УФЗ-структура запазва стабилна морфология, демонстрира умерено радиационно уякчаване, което не е съпроводено с окрежкостяване, и устойчивост на модула на Юнг, което говори за перспективността на този материал за продължителна експлоатация в ядрени реактори.

Бяха проведени и експерименти за сравнение на получените по метода на радиално-срязващото валцуване (РСВ) резултати с равноканалното ъглово пресоване (РКЪП) като референтен метод за получаване на УФЗ-структура. Беше показано, че структурата, получена с метода РСВ, притежава аналогична степен на смилане на зърното, но има по-благоприятна градиентна морфология и по-технологична мащабируемост.

Допълнително беше проучена възможността за използване на РСВ за обработване на циркониеви блокове с лята структура. Установено е, че методът РСВ има способността ефективно да затваря леярските микропори и дефекти чрез интензифициране на пластичното течение в обема на заготовката. Прилагането на РКЪП върху образци с лята структура също показва частично затваряне на дефектите, но в сравнение с РСВ изисква допълнителни стъпки за подготовка.

Проведени са изследвания за установяване на влиянието на температурата върху стабилността на получената УФЗ-структура и механичните характеристики. Установено е, че при температури до 400 °C структурата остава стабилна, а механичните свойства се запазват на високо ниво. При по-нататъшно нагряване се наблюдават признаци на рекристализация и растеж на зърното, придружени от намаляване на твърдостта и якостта.

Така, в резултат на проведеното изследване:

- Разработена и верифицирана е технологията за формиране на УФЗ-структура в сплав Zr-1%Nb чрез метода РСП;
- Потвърдена е възможността за получаване на дълги заготовки с градиентна структура и висока степен на раздробяване на зърното;
- Установена е корелация между структурата, текстурата и механичните свойства;
- Получени са високодетайлни карти на текстурата и микроструктурата, включително параметрите на Кернс.
- Потвърдена е високата радиационна устойчивост на УФЗ-циркониева сплав след йонно облъчване;
- Потвърдена е възможността за мащабируемост и приложимост на технологията РСВ в промишлена среда.
- Научната новост на изследването се състои в системния подход към изучаването на технологията РСВ на циркониевите сплави, включващ

моделиране, експеримент, микроструктурен анализ, изпитвания на механичните свойства и радиационната устойчивост. Работата съдържа оригинални резултати, които нямат аналог в достъпната научна литература.

- Практическата значимост е потвърдена от възможността за прилагане на предложената технология за промишлено производство на конструкционни материали за активната зона на реактори от ново поколение. Получените данни могат да се използват при разработването на нови технологии за производство на тръби за ядрено гориво с удължен срок на експлоатация и повишена безопасност.

Така, поставените в дисертацията цели са постигнати, задачите са решени, а получените резултати представляват ценен принос за развитието на материалознанието и технологиите в ядрената енергетика. Работата притежава висока степен на завършеност, вътрешна логика, научна обосновааност и експериментална достоверност.

#### **Научна новост:**

- В работата с помощта на компютърно моделиране чрез използване на МКЕ са изследвани закономерностите на формиране на напрегнато-деформационното състояние в процеса на радиално-срязващо валцуване на сплав на базата на цирконий и влиянието върху нея на геометричните и технологичните параметри.
- Проведен е експеримент с вариране на технологичните параметри на процеса на РСВ и са намерени оптималните параметри за получаване на УФЗ структура.
- С висока степен на детайлност по цялото сечение е изследван целият процес на еволюция на микроструктурата на всички етапи на получаване под въздействието на високи срязващи деформации и вихрово течение на метала, реализирани чрез метода РСВ;
  - Беше проведено облъчване с тежки йони на образци с градиентната структура, получена чрез метода РСВ, за да се моделира повреждане от фрагменти от деление и бяха проучени промените в механичните свойства и еволюцията на фината зърнена структура.

#### **Теоретична значимост на изследването:**

Проучена е възможността за успешно приложение на метод като РСВ към циркониеви сплави E110. Изследвани са закономерностите на формиране на УФЗ структура и нейната еволюцията, както и подобряването на механичните свойства на получените образци.

#### **Практическа значимост:**

Състои се в обосноваването на потенциалната възможност за прилагане на РСВ за производството на висококачествени детайли с повишени експлоатационни свойства, предназначени за използване в активната зона на ядрени реактори.

## **ПРИНОСИ ПО ДИСЕРТАЦИЯТА**

Дисертационната работа обхваща целия изследователски цикъл: от обосноваването на научната значимост и актуалност на темата, теоретичното моделиране на процесите и разработването на технологични режими до пълномащабни експерименти, комплексна микроструктурно характеризирани и установяване на механичните свойства, както и оценка на радиационната устойчивост на получения материал. На базата на получените резултати от проведените изследвания могат да се определят следните приноси.

### **Научни приноси:**

1. Създаден и реализиран е оригинален научен системен подход към изучаването на технологията на радиално-срязващото валцуване като метод за интензивна пластична деформация на циркониеви сплави, включващ: моделиране, експериментално валцуване, микроструктурен анализ, анализ на механичните свойства и изпитване на радиационна устойчивост. Получени са оригинални резултати, които нямат аналог в съществуващата научна литература.
2. Изследвана е възможността за успешно приложение на метода РСВ към циркониева сплав E110. Изследвани са закономерностите на формиране и еволюция на УФЗ структура и нейното влияние върху механичните свойства в получените образци. Получените данни разширяват фундаменталните представи за механизмите на формиране на зърнестата структура и текстурата в циркониевите сплави при РСВ.
3. Обосновани са физическите механизми за повишаване на якостните свойства и радиационната устойчивост при намаляване на размера на зърното до УФЗ ниво. Установено е, че високата плътност на границите на зърната допринася за формирането на устойчива структура и подобряване на комплекса от свойства на материала.

### **Научно-приложни приноси**

Разработена и експериментално потвърдена е технология за формиране на УФЗ структура в циркониеви сплави чрез методи за интензивна пластична деформация, по-специално радиално-срязващо валцуване (РСВ), с последващ анализ на структурните и експлоатационните характеристики на получения материал:

1. Създаден е модел на процеса РСВ с помощта на метода на крайните елементи в програмата DEFORM-3D. Анализирано е напрегнато-деформационното състояние на заготовката от изследваната циркониева сплав E110 (Zr-1%Nb) в условия на висока интензивност на деформация. Определени са оптималните параметри на валцуване, включително температурата на заготовката, скоростта на въртене на валците, степента на единичните относителни деформации и коефициентът на триене. Резултатите от моделирането са послужили като основа за проектиране на експериментални технологични режими и верификация на модела.

2. Експериментално е установено, че радиално-срязващото валцуване (PCB), което притежава уникалната способност да реализира големи пластични деформации с ясно изразена срязваща компонента и вихрово течение на метала в обема на заготовката, може успешно да се използва за получаване на ултрафинозърнена структура в изследваната циркониева сплав. Такъв подход позволи да се постигнат повишени механични характеристики на получените пръти при запазване на задоволителна пластичност.
3. С висока степен на детайлизация по цялото напречно сечение на прътите е изследвана еволюцията на микроструктурата на всички етапи на радиално-срязващото валцуване (след всеки проход). За анализ на структурата са приложени методи на електронна сканираща микроскопия (SEM/EBSD) и трансмисионна електронна микроскопия (ТЕМ):
  - a. Установена е еволюцията на микроструктурата, разкрит е характерът на разпределението на зърната и техните размери, видовете граници на зърната, наличието на субструктурни елементи и текстурни особености;
  - b. Установено е, че дялът на УФЗ-структура в напречното сечение на заготовката може да достигне до 35-40% от външния слой, формирайки ясна градиентна морфология, съчетаваща УФЗ-състояние в периферната зона с субмикрорекристална или рекристализирана структура в централната област.
  - c. С помощта на EBSD-анализ бяха получени високодетайлни карти на микроструктурата и текстурата, както и определена ориентацията на зърната и са получени параметрите на Кернс, отразяващи степента на анизотропия на материала. Установено е, че в процеса на PCB се формира предимно радиално-базирана текстура в центъра на пръта и нетипична за валцуването текстура с преобладаваща осево-базирана компонента в повърхностните слоеве.
4. Установени и оценени са механичните свойства на получените чрез PCB пръти, посредством изпитвания на статичен опън и измервания на микротвърдостта в напречното сечение на прътите:
  - a. Установено е повишение на якостта на опън в сравнение с изходния материал при запазване на достатъчна пластичност.
  - b. Установена е ясна корелация между локалната микроструктура и микротвърдостта, като зоните с УФЗ-структура демонстрират най-високите стойности.
5. Сравнявайки резултатите от прилагането на равноканално ъглово пресуване (РКЪП) като референтен метод за получаване на УФЗ-структура в металите с резултатите от радиално-срязващото валцуване за получаване на циркониева сплав с УФЗ структура, е установено, че радиално-срязващото валцуване позволява да се получи структура на метала, която притежава аналогична степен на раздробяване на зърното при по-малко на брой проходи, като при това структурата притежава градиентен характер и

специфична, потенциално благоприятна текстура. Освен това, РСВ притежава по-добра технологична мащабируемост.

6. Изследвана е възможността за използване на РСВ за обработване на циркониев слитък с леярска структура. Установено е, че методът РСВ притежава способността ефективно да затваря леярските пори и микродефекти за сметка на интензифицирането на пластичното течение в обема на заготовката. Прилагането на РКЪП върху слитък с леярската структура също показва частично затваряне на дефектите, но изисква допълнителни стъпки за подготовка.
7. Моделирано е радиационно увреждане на сплавта чрез облъчване с тежки йони на ускорителя ДЦ-60. Тази методология позволява да се възпроизведат ефекти, аналогични на увреждането от отломки от делене на ядрено гориво. Установено е, че получената циркониева сплав с УФЗ-структура запазва стабилна морфология, демонстрира умерено радиационно уякчаване, което не е съпроводено с окрежкостяване, и устойчивост на модула на Юнг, което говори за перспективността на този материал за продължителна експлоатация в реактори.
8. Установено е влиянието на температурата върху стабилността на получената УФЗ структура и механичните свойства на материала. Установено е, че при температури до 400 °С структурата остава стабилна, а механичните свойства се запазват на високо ниво. При по-нататъшно нагриване се наблюдават признаци на рекристализация и растеж на зърното, съпроводени от намаляване на твърдостта и якостта.

### **Приложни приноси:**

1. Експериментално е потвърдена възможността за производство на дълги детайли (пръти) с различен диаметър от циркониева сплав чрез прилагане на разработената технология на РСВ, като се получава прът с градиентна структура и висока степен на раздробяване на зърното.
2. Предлаганата технология е приложима за промишлено производство на конструкционни материали с подобрени експлоатационни свойства. Структурата на повърхностните слоеве на заготовката, заедно с нетипичната за валцувани изделия кристалографска текстура в резултат на РСВ, отваря нови перспективи в областта на създаването на високоефективни материали за ядрената енергетика, с повишена радиационна устойчивост и високи механични свойства при продължителна експлоатация. Получените данни могат да се използват при разработването на нови технологии за производство на горивни тръби с повишен срок на експлоатация и безопасност.

## УЧАСТИЯ И ПУБЛИКАЦИИ

### Научни публикации по темата на дисертацията:

1. Arbuz A., Kawalek A., Ozhmegov K., Panin E., Magzhanov M., Lutchenko N., Yurchenko V., *Obtaining an Equiaxed Ultrafine-Grained State of the Longlength Bulk Zirconium Alloy Bars by Extralarge Shear Deformations with a Vortex Metal Flow*, **Materials**, 2023, 16(3), 1062; pp. 1-14; <https://doi.org/10.3390/ma16031062>, Published by MDPI
2. Arbuz A.S., Popov F.E., Panichkin A.V., Kawalek A., Lutchenko N.A., Ozhmegov K. *Using the Radial-Shear Rolling Method for Casted Zirconium Alloy Ingot Structure Improvement*, **Materials**, 2024, 17(20), 5078; pp. 1-17; <https://doi.org/10.3390/ma17205078>; eISSN 1996-1944, Published by MDPI
3. Lutchenko, N., Yordanova, R., Arbuz, A., *Study of the effect of equal-channel angular pressing on the closure of casting defects in zirconium alloys*, **Journal of Chemical Technology and Metallurgy**, 2025, 60(2), pp. 345–358; ISSN 1314-7471
4. Alexandr Arbuz, Nikita Lutchenko, Rozina Yordanova, *FEM Method Study of the Advanced ECAP Die Channel and Tool Design*, **Modelling**, 2025, 6(1), 19; pp. 1-14; <https://doi.org/10.3390/modelling6010019>; eISSN 2673-3951, Published by MDPI
5. Арбуз А., Лутченко Н., Панин Е., Лепсибаев А., Магжанов М., *Использование МКЭ для моделирования радиально-сдвиговой прокатки сплава Zr-1%Nb*, **Вестник КазНУ** (Казахский национальный исследовательский технический университет имени К.И. Сатпаева), 2020. № 5 (141), 701-707; ISSN 1680-9211
6. Лутченко Н.А., Арбуз А.С., Кавалек А.А., Панин Е.А., Попов Ф.Е., Магжанов М.К. *Изучение влияния больших сдвиговых деформаций и вихревого течения металла на формирование равноосной ультрамелкозернистой структуры циркониевого сплава Э110 методом РСР*, **Литье и металлургия**, 2023;(1): 128-134. <https://doi.org/10.21122/1683-6065-2023-1-128-134>; ISSN 1683-6065

### Основните резултати от изследванията са докладвани и обсъдени на следните научни конференции:

1. Arbuz A., Kawalek A., Ozhmegov K., Lutchenko N., Panin E. *FEM-simulation of radial-shear rolling of Zr-1%Nb alloy* // **6th International conference on recent trends in structural materials (COMAT 2020)**, – Pilsen, 2020.
2. Panin E., Dikov A., Lutchenko N., Samokhvalov I., Magzhanov M. Arbuz A., *FEM simulation of fuel element loading under the UFG zirconium properties* // **3rd International Conference on Functional Materials and Applied Technologies (FMAT-2021)**, – Harbin, 2020.

3. Arbutz A., Panin E., Kawalek A., Samokhvalov I., Lutchenko N., Magzhanov M. *FEM simulation of Zr-1%Nb alloy processing by radial-shear rolling* // **The 7th Nuclear Materials Conference 2022 (NuMat-2022)**, – Gent, 2020.
4. Магжанов М.К., Панин Е.А., Попов Ф.Е., Лутченко Н.А., Куис Д.В., Арбуз А.С. *Моделирование вихревого пластического течения циркониевого сплава Э110 на основе пластометрических исследований* // **XXXV Международная научная конференция «Математические Методы в Технике и Технологиях - ММТТ-35»**. – Минск, 2022
5. Lutchenko N.A., Arbutz A.S., Popov F.E., Samokhvalov I.A. *FEM-simulation analysis of spherical cavity escap design at different channel angles* // **32nd International Conference on Metallurgy and materials «Metal 2023»**. – Brno, 2023. – P223-227
6. Н. Лутченко, А. Арбуз, Р. Йорданова, *Построяване и анализ на деформационните криви “напрежение – деформация” на сплав Zr-1%Nb сплав, получени при едноосен натиск*, Сборник с резюмета от **XXII Научна постерна сесия за млади учени, докторанти и студенти, ХТМУ, София, 20 юни 2025**, стр.62, ISSN 3033-0769
7. Н. Лутченко, А. Арбуз, Р. Йорданова, С. Янкова, Б. Янков, *Изследване влиянието на температурно-скоростните условия на деформация върху свойствата на Zr-1%Nb сплав при изпитване на едноосен натиск*, **Международна конференция, “Дни на Безразрушителния контрол”, 9-13 юни 2025, Созопол, България**
8. А. С. Арбуз, Н. А. Лутченко, Ф. Е. Попов, С. Н. Лежнев, И. Е. Волокитина, *Применение радиально-сдвиговой прокатки для улучшения микроструктуры циркониевых сплавов*, Сборник с резюмета от **XI международная конференция Семипалатинский испытательный полигон: наследие и перспективы развития научно-технического потенциала 6–10 октября 2025 г.**, г. Курчатова, Казахстан

**Връзка на дисертационната работа с научно изследователски проекти:**

1. Изследване, финансирано от Министерство на образованието и науката на Република Казахстан – *«Разработка технологии получения и исследования перспектив применения ультра мелкозернистого циркония с улучшенными механическими свойствами и повышенной радиационной стойкостью в ядерной энергетике»*; Грант № AP08052429
2. Изследване, финансирано от Министерство на образованието и науката на Република Казахстан – *«Исследования и разработка новой технологии производства высококачественных заглушек ТВЭЛов из некондиционных частей слитков для ядерной энергетике»*; Грант № AP14871811
3. Договор с НИС при ХТМУ № 403-09/2025, финансиран от субсидията за наука *«Изследване на влиянието на температурата и скоростта на деформация върху свойствата на Zr-1%Nb сплав при изпитване на едноосен натиск»*, 2025, р-л дог. проф. д-р инж. Розина Йорданова