



# TRANSFORMAÇÕES MICROESTRUTURAIS E RESISTÊNCIA MECÂNICA DE ZIRCALOY-4 SUBMETIDO A DIFERENTES TRATAMENTOS TERMOMECÂNICOS<sup>1</sup>

Raquel de Moraes Lobo<sup>2</sup>

Arnaldo Homobono Paes de Andrade<sup>2</sup>

## Resumo

A variação de resistência mecânica de amostras de Zircaloy-4 é avaliada através de medidas de dureza Vickers, correlacionando esses valores com as mudanças das características microestruturais após vários tratamentos termomecânicos. Amostras de Zircaloy-4 foram extraídas de um tarugo extrudado com diâmetro de 10 mm. Uma delas (CR) foi reservada como referência e as outras (A, B e C) foram inicialmente aquecidas a 1.000°C (fase  $\beta$ ) por 1 hora seguido por uma têmpera em água à temperatura ambiente. A amostra B também passou por um recozimento a 750°C/8h seguido da mesma têmpera, enquanto a amostra C, foi laminada a frio (65,5%), recozida a 750°C/3h e temperada em água à temperatura ambiente. As quatro amostras foram caracterizadas por microscopia óptica e por testes de dureza Vickers. Os resultados encontrados mostram uma variação de valores de dureza Vickers entre 173HV e 235HV, de acordo com as características microestruturais encontradas tais como agulhas de Widmanstätten, microestruturas com aspecto de cesto trançado e grãos equiaxiais, além da presença de partículas de segunda fase. Esses resultados mostram a influencia das características microestruturais encontradas após cada tratamento térmico, assim como a importância da precipitação nas variações de resistência mecânica do material.

**Palavras-chave:** Zircaloy-4; Tratamento térmico; Microestrutura; Dureza Vickers.

## MICROSTRUCTURAL TRANSFORMATIONS AND MECHANICAL STRENGTH OF ZIRCALOY-4 SUBMITTED TO DIFERENTS THERMOMECHANICAL TREATMENTS

### Abstract

The variation of mechanical strength of Zircaloy-4 samples is evaluated by Vickers hardness measurements and correlated these values with the changes in microstructural characteristics after various thermo-mechanical treatments. Zircaloy-4 samples were taken from an extruded billet with a diameter of 10 mm. One (CR) was reserved as a reference and the other (A, B and C) were initially heated to 1000°C ( $\beta$  phase) for 1 hour followed by a quench in water at room temperature. Sample B also underwent an annealing at 750°C/8h followed the same temper, while the sample C, was cold rolled (65.5%), annealed at 750°C/3h and quenched in water at room temperature. The four samples were characterized by optical microscopy and Vickers hardness tests. The results show a variation of Vickers hardness between 173HV and 235HV, according to the microstructural characteristics such as Widmanstätten needles, microstructures with aspect of basketweave and equiaxed grains besides the presence of second phase particles. These results show the influence of microstructural characteristics found after each heat treatment, as well as the importance of precipitation changes in the mechanical strength of the material.

**Key words:** Zircaloy-4; Thermal treatment; Microstructure; Vickers hardness.

<sup>1</sup> Contribuição técnica ao 65º Congresso Anual da ABM, 26 a 30 de julho de 2010, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

<sup>2</sup> Doutor, IPEN – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares



## 1 INTRODUÇÃO

O Zircaloy-4, uma liga metálica composta por Zr-Fe-Cr que apresenta alta resistência química e boa resistência mecânica, é muito utilizado na indústria nuclear, em reatores nucleares como material estrutural e de revestimento dos elementos combustíveis. Nos reatores do tipo PWR (Pressurized Water Reactor) os tubos feitos com essa liga, abrigam o material nuclear e constituem a primeira barreira contra a disseminação de elementos radiativos. A integridade desses componentes durante a sua utilização nos reatores depende diretamente dos efeitos que a radiação nas propriedades mecânicas e influência sobre sua microestrutura.<sup>(1)</sup> A microestrutura dessas ligas pode variar significativamente devido a transformação de fase do zircônio, que ocorre a 850°C, e a diferença de solubilidade dos elementos de liga nas diferentes fases. A precipitação dessas partículas é considerada uma das grandes responsáveis pelas variações de propriedades e comportamento mecânico desse material.<sup>(2)</sup> Além dela, a textura cristalográfica<sup>(3)</sup> também tem influência sobre as propriedades físicas de materiais hexagonais compactos (hc) como é o caso do zircônio.

A formação de hidretos em ligas de zircônio pode levar ao atraso no trincamento e ao empolamento superficial devido a sua presença.<sup>(4)</sup> Sua identificação e quantificação<sup>(5)</sup> são de vital importância para a segurança e longevidade de muitos componentes nucleares. Os efeitos do conteúdo de hidrogênio nas propriedades mecânicas do revestimento do elemento combustível são distintos em relação a sua orientação.<sup>(6,7)</sup>

O estudo da variação dessas propriedades deve estar embasado no conhecimento das variações microestruturais que o material apresenta ao ser submetido a diferentes tratamentos termomecânicos e em como essas variações alteram sua resistência mecânica. O objetivo do trabalho é fazer uma correlação as variações microestruturais e a resistência do material através de testes de dureza Vickers, após diferentes tratamentos térmicos.

## 2 MATERIAL E MÉTODOS

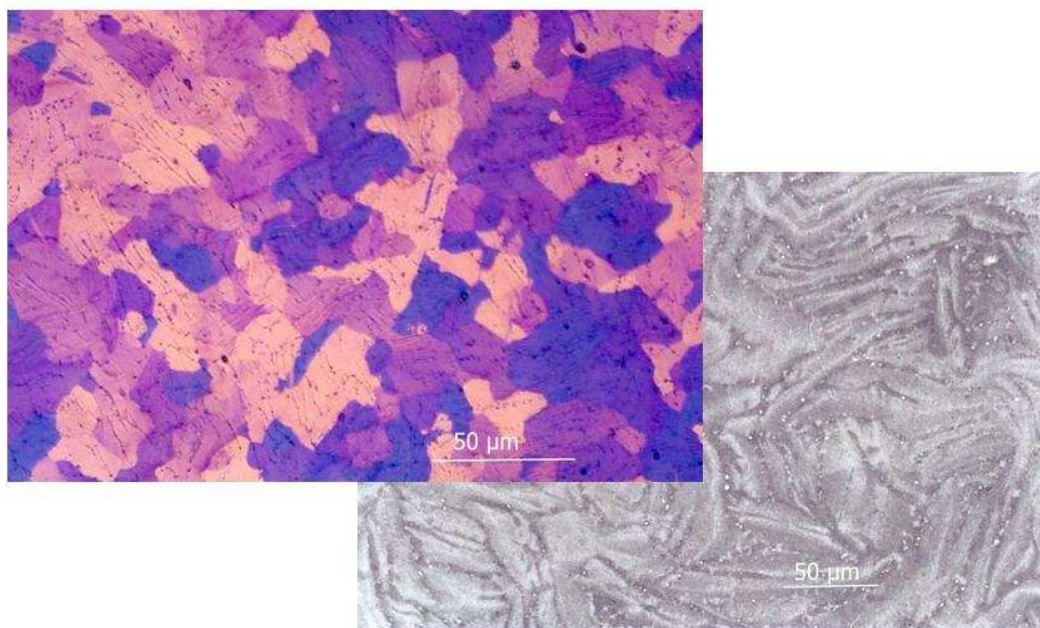
As amostras de Zircaloy-4 foram extraídas de um tarugo com 10 mm de diâmetro e aquecidas em forno de resistência, com atmosfera estanque de argônio e pressão da ordem de 0,1 MPa. Uma amostra do material como recebido (CR) foi reservada para fazer a comparação da variação microestrutural, após cada tratamento térmico. O primeiro passo foi um aquecimento a 1000°C (fase  $\beta$ ) por uma hora, seguido por uma têmpera em água à temperatura ambiente, cuja microestrutura foi analisada através da uma amostra A. Após esse aquecimento, a amostra B, foi recozida a 750°C por 8 horas e temperada em água à temperatura ambiente, enquanto a amostra C foi primeiro laminada a frio (6,5%), recozida a 750°C durante 3 horas e finalmente passou pela mesma têmpera.

As observações microestruturais foram realizadas por microscopia óptica (MO) e a dureza foi determinada por testes de dureza Vickers. As amostras depois de lixadas em lixas d'água de SiC foram polidas com pasta de diamante de granulação 6  $\mu$ m, 3  $\mu$ m e 1  $\mu$ m, associada a um ataque rápido de cerca de 3 s, com solução de 45% de H<sub>2</sub>O, 45% de HNO<sub>3</sub> e 10% de HF, de forma intercalada entre os polimentos. O passo seguinte foi um ataque-polimento realizado através de um polimento com alumina nas granulações de 0,3  $\mu$ m e 0,05  $\mu$ m, dissolvidas em água, em solução abrasiva composta por 250 ml de H<sub>2</sub>O, 22 ml de HNO<sub>3</sub> e 3ml de HF.

Devido a alta resistência a corrosão do Zircaloy-4 sua microestrutura só pode ser avaliada com a revelação da microestrutura observada em luz polarizada, após uma anodização. Esse procedimento consiste em aplicar uma tensão de 20 V, durante 15 s, entre a superfície da amostra e um béquer de aço inox, imersa em uma solução anodizante composta por 35 ml de água, 30 ml de álcool etílico, 20 ml de glicerina, 10 ml de ácido láctico, 5 ml de ácido fosfórico e 2g de ácido cítrico. As observações microestruturais foram realizadas em um MO com luz polarizada, e a microdureza realizada em um durômetro modelo Testor 2, da marca Wolpert.

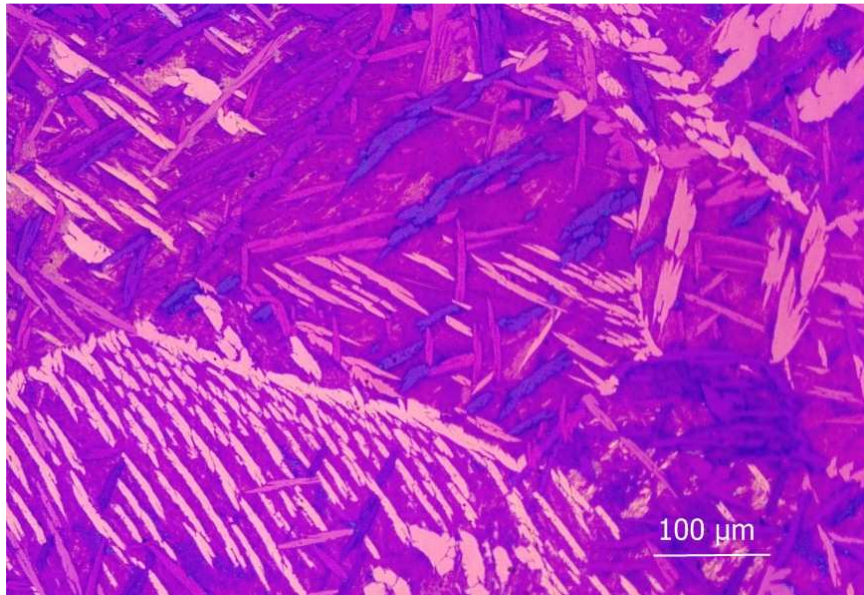
### 3 RESULTADOS

As micrografias da amostra CR, apresentadas na figura 1 mostram as características microestruturais de um material que foi bastante deformado devido ao processo de extrusão pelo qual passou durante sua conformação. A imagem cinza foi obtida fazendo um esfregamento após o lixamento. A segunda imagem mostra os contornos de grão e a intensa precipitação que ocorre preferencialmente na forma intragranular. O valor de microdureza Vickers encontrado para esta amostra é de 174HV.



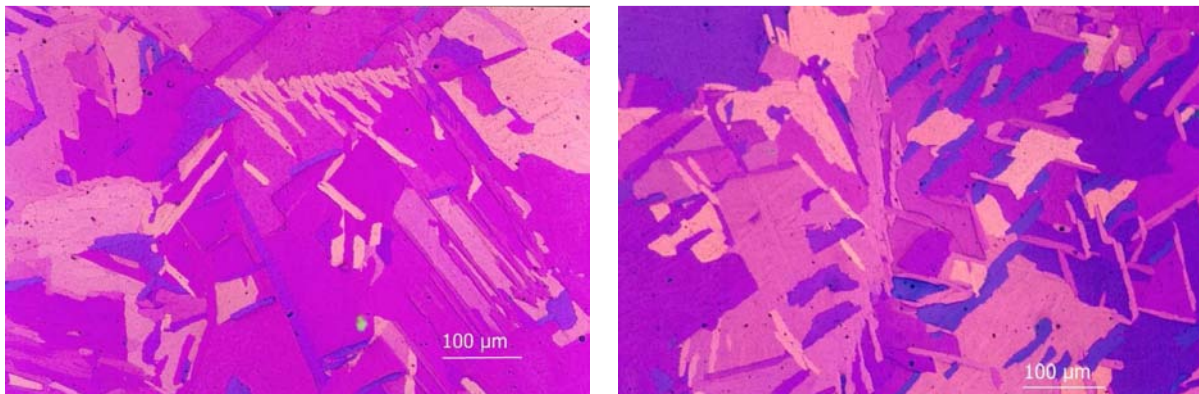
**Figura 1.** Amostras de Zircaloy-4 como recebidas mostrando o material bastante deformado devido ao processo de extrusão durante sua conformação.

O resultado para a amostra que passou pelo tratamento A é apresentado na Figura 2, e mostra uma estrutura caracterizada pela presença de agulhas de Widmanstätten. Essa microestrutura confere o maior valor de dureza Vickers encontrado em todos os tratamentos térmicos realizados no material, com um valor igual a 235HV.



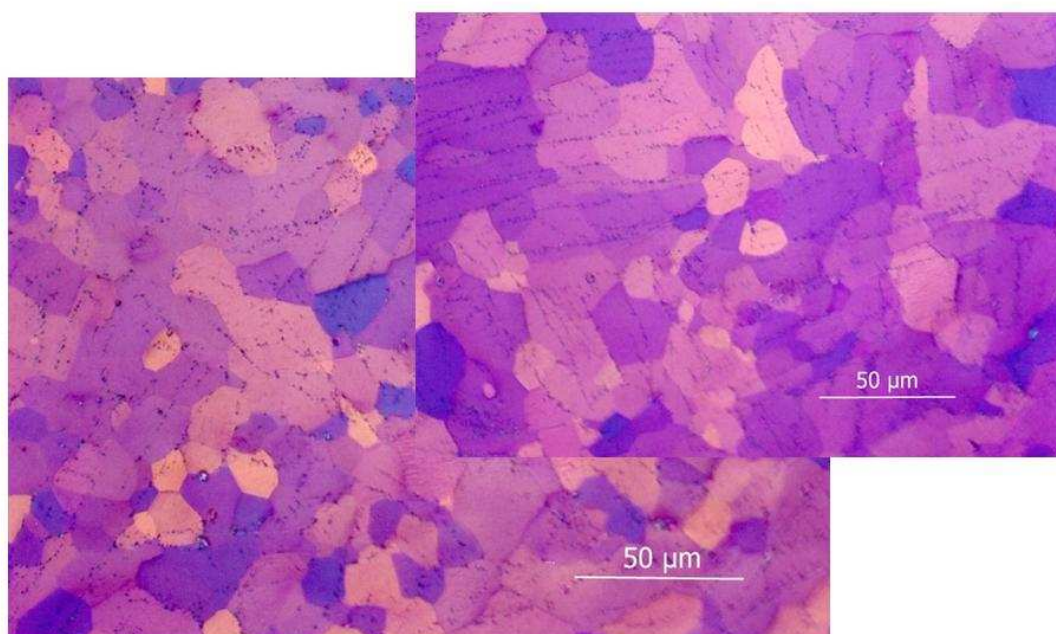
**Figura 2.** Microestrutura de Zircaloy-4 após aquecimento a 1.000°C por 1 h, seguido por têmpera em água a temperatura ambiente, que se caracterizam pela presença de agulhas de Widmanstätten.

O tratamento B produziu na amostra uma microestrutura resultante composta por lamelas paralelas, sendo possível identificar algumas agulhas características do tratamento anterior. Na Figura 3 são mostradas micrografias resultantes a esse tratamento. O valor de dureza calculado para esta amostra é praticamente o mesmo da amostra como recebida, com valor 173HV.



**Figura 3.** Micrografias das amostras após o tratamento B: aquecimento de 1.000°C por 1 h, têmpera, recozimento a 750°C por 8h e novamente têmpera em água a temperatura ambiente.

A amostra C apresenta uma microestrutura composta por grãos equiaxiais, com intensa precipitação de partículas de segunda fase, que são apresentadas na Figura 4. O valor de dureza Vickers encontrado após esse tratamento é igual a 198 HV.



**Figura 4.** Micrografias resultantes após tratamento C: aquecimento a 1.000°C/1h + têmpera + laminação a frio (65%) + recozimento a 750°C/3h + têmpera em água à temperatura ambiente.

#### 4 DISCUSSÃO

A resistência mecânica de Zircaloy-4 foi avaliada de acordo com a variação do valor de dureza Vickers, encontrado após cada tratamento térmico realizado e correlacionada com as características microestruturais encontradas.

O material CR, com valor 174HV, revela que o material se encontra em uma condição recozida, após ter sido submetido a um grau elevado de deformação durante o seu processamento.

A têmpera a partir da solubilização efetuada a 1.000°C, durante o tratamento A, elevou a dureza ao maior nível encontrado, 235HV, devido ao surgimento da estrutura de Widmanstätten e da precipitação que ocorreu no interior dessas agulhas. Ao ser aquecido acima de 850°C, a amostra se encontrava na fase  $\beta$  antes do resfriamento rápido. Durante a têmpera, ocorreu a precipitação da fase  $\alpha$  nos antigos grãos  $\beta$ , que é caracterizada pela presença das agulhas de Widmanstätten. O crescimento dessas agulhas ocorre em direções preferenciais, paralelas umas as outras, com mesma orientação cristalográfica, com origem nos contornos dos antigos grãos  $\beta$  em direção ao centro desses grãos.

Após o recozimento a 750°C, realizado no tratamento B, ocorreu um decréscimo do valor de dureza desse nível mais elevado a um valor praticamente igual ao da amostra como recebida, com 173HV. A microestrutura desse tratamento é composta por lamelas paralelas, sendo possível identificar algumas agulhas do tratamento anterior. O crescimento das lamelas ocorre tanto para frente quanto lateralmente, sendo limitado pelo crescimento de outras lamelas. Ao se encontrarem produzem uma microestrutura com aspecto trançado, em forma de cesta (*basketweave*).

No tratamento C, após o trabalho a frio, a microestrutura mostra uma precipitação maior de partículas nos grãos equiaxiais. Essa precipitação eleva o valor de dureza a 198 HV. É interessante notar que a laminação foi realizada no material que possuía uma microestrutura composta pelas agulhas de Widmanstätten, que depois passa por um recozimento a 750°C por 3 h. A microestrutura resultante é composta por grãos equiaxiais com intensa precipitação de partículas de segunda fase.

## 5 CONCLUSÃO

Os tratamentos térmicos realizados nas amostras de Zircaloy-4 resultaram em microestruturas típicas a cada processo, com diferentes valores de dureza Vickers. O maior valor de dureza, 235HV, está associado a microestrutura caracterizada pela presença de agulhas de Widmanstätten, além da observação de precipitação de partículas em seu interior.

Os menores valores de microdureza Vickers, 173 HV e 174 HV, foram encontrados nas amostras que passaram por um recozimento após serem submetidas a um alto grau de deformação: a amostra CR pela conformação em forma cilíndrica e a amostra B pela laminação a frio de 65%.

O valor de 198 HV, encontrado na amostra C é explicado pela grande precipitação de partículas de segunda fase presentes em sua microestrutura. Esses resultados demonstram que tanto a microestrutura com a presença de agulhas de Widmanstätten, quanto a intensa precipitação proporcionam um aumento no valor na resistência do Zircaloy-4.

## REFERÊNCIAS

- 1 Onimus, F.; Béchade, J. L.; Duguay, C.; Gilbon, D.; Pilvin, P. Investigation of neutron radiation effects on the mechanical behavior of recrystallized zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials*, v. 358, p. 176-189, 2006.
- 2 Toffolon-Masclat, C.; Guilbert, T.; Brachet, J. C. Study of secondary intermetallic phase precipitation/dissolution in Zr alloys by high temperature-high sensitivity calorimetry. *Journal of Nuclear Materials*, v. 372, p. 367-378, 2008.
- 3 Romero, J.; Preuss, M.; Fonseca, J. Q. Texture memory and variant selection during phase transformation of a zirconium alloy. *Acta Materialia*, v. 57, p. 5501-5511, 2009.
- 4 Steuwer, A.; Santisteban, J. R.; Preuss, M.; Peel, M. J.; Buslaps, T.; Harada, M. Evidence of stress-induced hydrogen ordering in zirconium hydrides. *Acta Materialia*, v. 57, p. 145-152, 2009.
- 5 Daum, R. S.; Chu, Y. S.; Motta, A. T. Identification and quantification of hydride phases in Zircaloy-4 cladding using synchrotron X-ray diffraction. *Journal of Nuclear Materials*, v. 392, p. 453-463, 2009.
- 6 Kim, J. H.; Lee, M. H.; Choi, B. K.; Jeong, Y. H. Effects of oxide and hydrogen on the circumferential mechanical properties of Zircaloy-4 cladding. *Nuclear Engineering and Design*, v. 236, p. 1867-1873, 2006.
- 7 Chu, H. C.; Wu, S. K.; Chien, K. F.; Kuo, R. C. Effect of radial hydrides on the axial and hoop mechanical properties of Zircaloy-4 cladding