

文章编号:1673-9981(2007)02-0122-05

织构对锆合金拉伸和爆破性能的影响

彭继华^{1,2}, 李文芳¹, Jean-Luc Bechade², Rauchy Morry²

(1. 华南理工大学机械工程学院, 广东 广州 510640;

2. 法国原子能委员会 Saclay 研究中心核燃料服役行为研究室, 巴黎 91191)

摘要: 研究了两种组织形貌相似的核燃料包壳管材 M5 和 N36 锆合金的拉伸性能和爆破性能. 利用 X 射线衍射仪分析了它们的织构. 试验结果表明, 两种材料表现出明显的各向异性. 同时分析了织构因素对 Schmidt 因子的影响, 结合研究管材的力学性能各向异性, 建立了拉伸、爆破屈服强度同织构的定性关系.

关键词: 锆合金; 织构; 力学性能

中图分类号: TG146.4; TG115.22; TG113

文献标识码: A

从 Zr2, Zr-Nb 合金开始, 核燃料包壳材料研究开发的重点一直集中于提高在使用环境中包壳材料的抗腐蚀能力. 随着对腐蚀机理研究的不断深入, 采用成分和制备过程优化的途径来提高 Zr-4 合金的抗腐蚀能力几乎走到了尽头^[1-8]. 目前, 锆合金包壳材料在堆内、堆外的力学性能越来越多地受到关注. 一方面, 随着现有核反应堆的逐渐退役, 核废料的保存要求包壳材料在相应的应力水平和温度条件下保持完整. 另一方面, 从经济效益的角度出发, 提高燃耗、延长换料周期、提高冷却剂温度是核动力反应堆今后发展的方向, 目前已开发出了多种先进锆合金^[2-10].

在堆外研究包壳材料的性能可以排除核辐射的交互影响, 给堆内包壳材料的力学行为作出简单解释. 由于锆合金的晶体结构和锆合金管材的制备工艺, 使锆合金管材中存在一定程度的织构, 这些织构对管材的腐蚀和力学性能均有重要影响. 本文通过对 M5 和 N36 这两种先进锆合金的力学性能各向异性与织构的研究, 分析织构对 Schmidt 因子的影响, 建立拉伸、爆破屈服强度与织构的 Kearns 因子之间的定性关系, 为合金制备过程的优化提供一些有益的参考.

1 试验方法

试验材料为中国核动力设计研究院提供的 N36 和法国法玛通公司(Frammatone-ANP)提供的 M5. 将 N36 制成直径 9.5 mm、壁厚 0.57 mm 的管材, M5 管材的直径为 9.5 mm, 壁厚为 0.56 mm. 两种管材均经再结晶退火处理, 管材的化学成分列于表 1.

表 1 锆合金管材的化学成分

Table 1 Chemical composition of claddings studied

合金	元素 w/%				
	Nb	O	Sn	Fe	Zr
M5	1	0.12	—	—	余量
N36	1	<0.09	1	0.3	余量

在法国原子能委员会 Saclay 研究中心的 LLOYD 试验机上进行拉伸试验. 管材试样的长度为 125 mm, 将其两端用金属堵上. 在大气环境和给定的温度下, 应变速率 $2.5 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$.

在法国原子能委员会 Saclay 研究中心的 TE-MA Concept 试验机上进行爆破试验. 管材试样的

收稿日期: 2006-12-14

作者简介: 彭继华(1968-), 男, 四川汉源人, 副教授, 博士.

长度为 125 mm,将试样的一端密封,另一端接通油压管后密封.用四个石英应变规(90°分布)测试管材的膨胀应变.在大气环境和给定的温度下,应变速率 $2.5 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$.从锆合金管材上截取 30 mm 的样品,先机械减薄至约 0.2 mm,再化学减薄至 0.03~0.05 mm 后展开成片状,利用法国原子能委员会 Saclay 研究中心的 TEXVALE X 射线衍射织构仪观察其织构特征.

2 微观组织结构及织构分析

图 1 为合金的 TEM 明场形貌.由图 1 可见, M5 和 N36 合金均由等轴 α 晶粒组成. N36 合金的晶粒尺寸为 $3 \sim 5 \mu\text{m}$, M5 合金的晶粒尺寸为 $5 \sim 8 \mu\text{m}$.在 α 晶粒内部和晶粒边界均有明显的细小析出相.

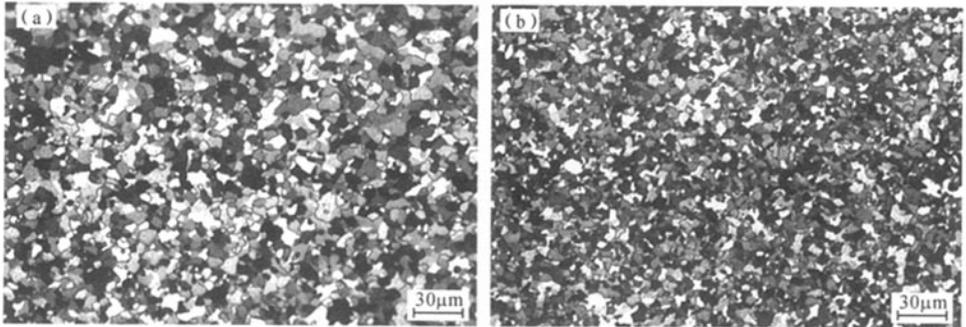


图 1 管材的透射电镜照片

(a) M5; (b) N36

Fig. 1 TEM micrography of claddings

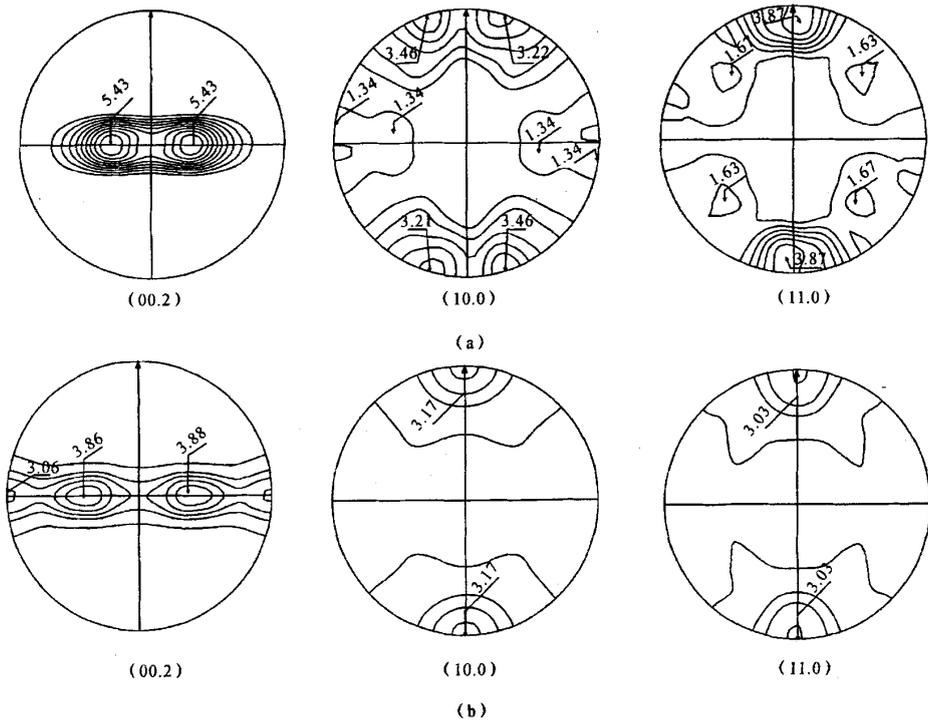


图 2 锆合金管材织构极图

(a) M5 合金的(0002) $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 织构极图; (b) N36 合金的(0002) $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ 织构极图

Fig. 2 Pole figures of zirconium alloys

图2为锆合金的(0002)晶体学面分布极图.两种合金管材的(0002)晶体学面极密度在相互垂直的轴向、径向和环向的Kearns因子列于表2.

两种合金管材在350℃和400℃下的拉伸性能列于表3,在350℃下的爆破力学性能列于表4.由表3和表4可知,N36合金有较高的屈服强度和破断应力,但破断的塑性变形量较低.

表2 锆合金管材的Kearns因子
Table 2 Kearns factors of zirconium alloys

合金	Kearns 因子		
	f_R (径向)	f_A (轴向)	f_T (环向)
N36	0.482	0.077	0.441
M5	0.649	0.059	0.292

表3 锆合金管材的拉伸性能

Table 3 Mechanical properties of zirconium alloys

试验温度/℃	合金	试样编号	弹性比例极限应力/MPa	0.2%屈服应力 σ_s^A /MPa	最大应力/MPa	最大应力点塑性应变/%	破断点塑性应变/%
400	M5	T11943	112	134	237	11.8	31.1
	N36	T13050	102.6	171.1	271.3	12.3	21.9
350	M5	T11953	101	135	252	16.0	32.1
	N36	T13054	124.1	192.9	298.7	12.3	24.2

表4 锆合金管材的爆破力学性能

Table 4 The burst properties of zirconium alloy claddings

合金	试样编号	杨氏弹性模量/GPa	弹性比例极限应力/MPa	0.2%屈服应力 σ_s^A /MPa	最大应力/MPa	最大应力点塑性应变/%	破断点塑性应变/%
M5	E2278	100.6	178	208	314	0.106	0.653
N36	E2645	107.07	160	250	325	0.022	0.254
	E2647	98.27	201	260	343	0.059	0.360

3 讨论及分析

由图2可以确定,在再结晶退火状态下M5合金管材的织构为(0002) $\langle 11\bar{2}0 \rangle$,N36合金管材的织构为(0002) $\langle 10\bar{1}0 \rangle$.同M5合金管材相比,N36合金管材的基面绕c轴转动了约30°.两种合金中晶粒的c轴几乎与管材的径向平行(垂直轧面),沿环向倾转约30°,且N36合金中(0001)极图沿环向的分布更加散漫.M5合金管材的轴向为 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$,而N36合金管材的轴向介于 $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ 与 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 之间.Kearns因子分析表明,垂直轧面方向(径向)的极密度最高,沿环向次之,而在轴向(轧向)几乎没有分布.同极图的直观结果一致,M5合金管材(0002)极图径向的Kearns因子大于N36合金,而沿环向的Kearns因子则小于N36合金.

单晶体的屈服强度 σ_s 与开动位错的临界剪切应力 τ_c 间存在Schmidt关系,即:

$$\sigma_s = \tau_c / \Omega, \quad (1)$$

式(1)中, $\Omega = \cos\varphi\cos\lambda$ 为加载方向与滑移面和滑移方向间形成的Schmidt因子.考虑到用于存在织构的多晶体材料,式(1)中的 τ_c 和 Ω 必须通过方向分布密度函数加权平均^[11-12],而考虑方向密度函数(ODF),计算就非常复杂.

对于织构多晶体材料,式(2)能够将织构及组织形貌的影响综合考虑.

$$\sigma_s = A\tau_c / (\bar{\Omega}f_c \sqrt{d}) \quad (2)$$

式(2)中,A为常数, f_c 为考虑极图密度分布的Kearns因子, d 为晶粒尺寸.

由图2可以看出,N36合金的基面绕c轴转动了近30°,轴向由M5合金的 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 转向 $\langle 10\bar{1}0 \rangle$.单轴拉伸时,一个晶胞中参与滑移的棱柱面(10 $\bar{1}0$)增加了一倍,考虑到多晶体的体积统计平均, $\bar{\Omega}_{N36} \approx \sqrt{2} \bar{\Omega}_{M5}$.将上述分析因子代入式(2),并假定:虽然两种锆合金的成分不同,但启动同样位错体系的临界剪切应力 τ_c 基本相同^[12],均为纯锆单晶的相应值, $\sigma_{N36} / \sigma_{M5} \approx 1.3464$,与350℃下的拉伸试验

结果的平均值 $\sigma_{N36}/\sigma_{M5} \approx 1.3444$ 非常接近。

结合极图分析结果以及上述拉伸试验和爆破试验的结果,可以计算出两种材料的各向异性参数(横向收缩应变比 R, P)、可加工参数 $B^{[13]}$ 及 σ_s^0/σ_s^A 。计算结果列于表 5。

表 5 锆合金管材的各向异性参数

Table 5 The anisotropic coefficient of claddings

合金	状态	f_t	σ_s^0/σ_s^A	R	P	B
M5	再结晶退火	0.649	1.54	3.78	1.85	1.27
N36	再结晶退火	0.482	1.40	1.852	0.93	0.98

由表 5 可见,各向异性参数与两种合金的织构形态是一致的。由于 M5 合金的织构比 N36 合金的强,所以其各向异性参数 P 和 R 均比 N36 合金的高。

目前,锆合金织构对堆内、堆外包壳材料性能的影响已有许多深入的研究。值得指出的是:氢化物总是垂直于 c 轴形成、长大。(0002)极图越靠近轧面法向,越能有效防御氢化物引发的脆性断裂^[13]。所以,必须综合考虑织构对包壳材料的力学性能(强度、蠕变)、氢化物致脆、腐蚀、应力腐蚀及辐照效应等的影响。

4 结 论

通过对 M5 和 N36 锆合金管材的织构分析及较系统的拉伸试验和爆破试验结果分析,揭示了两种锆合金的堆外拉伸性能及爆破性能差异产生的原因,并通过试验获得了两种合金的各向异性参数。

N36 合金的堆外屈服应力及破断应力均高于 M5 合金;(0002)织构的差异是造成两种合金堆外拉伸性能和爆破性能差异的重要因素。屈服强度同织构的定性关系可表示为: $\sigma_s = A\tau_c/(\bar{\Omega}f_t \sqrt{d})$; M5 合金的各向异性参数 R 和 P 均高于 N36 合金。

致谢

感谢 SRMA/DEN/CEA/Saclay 的 R. Jacky 工程师在织构测试工作中给予的帮助,感谢 SRMA 主任 D. Gilbon 博士和 Fammatone-ANP 包壳材料首席科学家 J. P. Mardon 博士的有益指导。感谢中国核动力设计研究院及 Fammatone-ANP 提供研究用管材。

参考文献:

- [1] PENG J, BECHADE J L, MAURY R, et al. Mechanical properties of cladding tubes obtained from Framatome-ANP and from NPIC[R]. Paris: SRMA/DEN/CEA/Saclay, 2002.
- [2] MARDON J P, CHARQUET D, SENEVAT J. Influence of composition and fabrication process on out-of-pile and in-pile properties M5 alloy [C]//SABOL G P, MOAN G D. Zirconium in the nuclear industry (ASTM STP 1354). New York: Mc-Hill, 2000: 505-524.
- [3] SEIBOLD A, MARTON J P. M5 cladding experience in European PWRs[C]. Stuttgart: Jahrestagung Kerntechnik, 2002:293-298.
- [4] GILBON D, SONIAK A, DORIOT S, et al. Irradiation creep and growth behavior and microstructural evolution of advanced Zr-based alloys[J]. Zirconium in the Nuclear Industry, 2000, 1354:51-73.
- [5] ZHAO W J, ZHOU B X. Studies of new zirconium alloys[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2001, 30:19-23.
- [6] 刘文庆,李强,周邦新,等. 热处理制度对 N18 新锆合金耐腐蚀性能的影响[J]. 核动力工程, 2005, 26(3): 249-253.
- [7] MURTY K L, WIRATMO, J R. Transition in creep mechanisms and creep anisotropy in Zr-1Nb-1Sn-0.2Fe sheet[J]. Nucl Eng Des, 1995, 156:359-371.
- [8] SABOL G P, KILP G R, BALFOUR M G, et al. Development of a cladding alloy for high burnup[J]. Zirconium in the Nuclear Industry, 1989, 1023: 227-244.
- [9] NIKULINA A V, MARKELOV V A, PEREGUD M M, et al. Zirconium alloy E635 as a material for fuel rod cladding and other components of VVER and RBMK cores[J]. Zirconium in the Nuclear Industry, 1996, 1295: 785-804.
- [10] NIKULINA A V, GONCHAROV V I, MARKELOV V A, et al. Effects of microstructure on ductility and fracture resistance of Zr-1.2Sn-1Nb-0.4Fe alloy[J]. Zirconium in the Nuclear Industry, 1996, 1295: 695-709.
- [11] WANG Y N, HUANG J C. Texture analysis in hexagonal materials[J]. Materials Chemistry and Physics, 2003, 81: 11-26.
- [12] BRENNER R, BECHADE J L, CASTELNAU O, et al. Thermal creep of Zr-Nb1%-O alloys: Experimental analysis and micromechanical modeling [J]. Journal of Nuclear Materials, 2002, 305: 175-186.
- [13] MURTY K L, CHARIT I. Texture development and anisotropic deformation of zircaloys [J]. Progress in

Nuclear Energy, 2006, 48: 325-359.

Study on the effect of texture on tension and burst properties of zirconium alloys

PENG Ji-hua^{1,2}, LI Wen-fang¹, Jean-luc Bechade², Rauchy Morry²

(1. College of Mechanical Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China;

2. SMRA/DEN/CEA/Saclay, Gif-Sur-Yvette Cedex 91191, France)

Abstract: The tension and burst properties of M5 from France and N36 from China were studied. Textures of these cladding were analyzed by X-ray diffraction. It is shown that mechanical properties of these cladding were anisotropic. The dependence between texture and yield stress of these cladding was established qualitatively by considering the effect of texture on Schmidt factor and anisotropy of mechanical properties.

Key words: zirconium alloys; texture; mechanical properties