

U-8Mo 合金与 Zr-4 合金的相容性研究

贺进明 隋 政 孙祎强 牟雪婷 董 青
(中核北方核燃料元件有限公司)

摘 要 采用扩散偶的方法,在 900 ℃和 1 000 ℃下分别进行 6 h 和 12 h 的扩散试验,探究了 U-8Mo 合金与 Zr-4 合金界面的相容性。结果表明,U-8Mo 合金与 Zr-4 合金间有明显的扩散现象,U-8Mo 合金向 Zr 的扩散过程中 Mo 元素扩散速率更快,形成 Mo₂Zr 相,U 元素主要以固溶体形式存在于 Zr 基体中,U-8Mo 合金与 Zr-4 合金具有良好的相容性。

关键词 U-8Mo 合金;Zr-4 合金;热扩散;相容性

中图分类号 TG146.8 **文献标志码** A

DOI:10.15980/j.tzzz.2021.07.017 开放科学(资源服务)标识码(OSID):



Compatibility of U-8Mo Alloy and Zr-4 Alloy

He Jinming, Sui Zheng, Sun Yiqiang, Mu Xueting, Dong Qing
(China North Nuclear Fuel Co., Ltd.)

Abstract: The interface compatibility of U-8Mo alloy and Zr-4 alloy was investigated by diffusion-couple method through diffusion test at 900 ℃ and 1 000 ℃ for 6 and 12 h, respectively. The result indicates that the diffusion phenomenon can be observed significantly between U-8Mo alloy and Zr-4 alloy. The diffusion rate of Mo element is faster during the diffusion process of U-8Mo to Zr-4, leading to the formation of Mo₂Zr phase. The U element exists in Zr-base in form of solid solution, and U-8Mo alloy has good compatibility with Zr-4 alloy.

Key Words: U-8Mo Alloy, Zr-4 Alloy, Thermal Diffusion, Compatibility

U-Mo 合金燃料具有铀密度高、 γ 相稳定、辐照性能良好和后处理简单等特点,是非常有前景的研究试验堆燃料之一,也是国际高密度低浓度核燃料的重要研究对象^[1,2]。研究证实,Mo 含量为 6%~10% 的 U-Mo 合金作为燃料表现出了良好的抗辐照性能,更适应于反应堆环境,尤其是 U-8Mo、U-10Mo 合金燃料中的 γ 相更稳定,具有良好的应用前景。关于 U-Mo 合金燃料与包壳之间的界面研究,大多集中在与 Al 包壳上,而有关 Zr 包壳研究的报道较少^[2]。LEE C T 等^[3]发现 Zr 作为与铝合金间的阻挡层来阻止 U-Mo 合金与 Al 合金的扩散反应效果良好,以 Zr 为包壳的 U-Mo 合金燃料元件是解决 U-Mo 合金燃料元件肿胀失效问题的有效方法^[4]。陈建刚等^[4]、刘云明等^[5]分别研究了 U-10Mo 合金燃料与包壳材料 N18、Zr 合金在 750~800 ℃下不同热处理时间下的界面状态,得到了一些界面作用的规律。然而,从中子物理学观点看,要最大限度地减少燃料循环长度的损失和最大限度地提高铀合金的密度,U-Mo 合金中的 Mo 含量应控制在 9% (质量分数) 以下。因此,作为同样具有 γ 相稳定的 U-8Mo 合金燃料,研究更高温度下的包壳材料在反应堆工况下遭到的

破坏,以保证反应堆正常运行和人身安全及其使用寿命的预测具有积极意义。

本课题制备了 U-8Mo/Zr-4 合金热扩散偶,对热扩散偶 Zr 侧扩散层、界面层进行 X 射线衍射和扫描形貌、能谱等分析,研究了 U-8Mo 合金与 Zr-4 合金相容性问题,以探究 U-8Mo 合金与 Zr-4 合金相互作用规律,旨在为其应用提供参考。

1 试验材料及方案

所用 U-8Mo 合金采用非自耗电弧熔炼的方法制备。试样为纽扣状,质量为 80~100 g。Zr-4 合金成分为 Zr-1.5Sn-0.2Fe-0.1Cr-0.09。

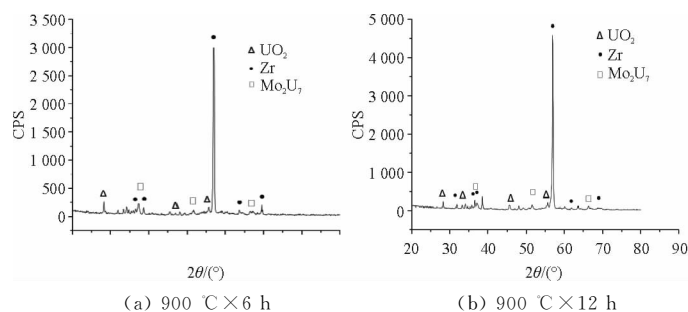
对制得的 U-8Mo 纽扣锭和 Zr-4 合金同时取 $\phi 8$ mm 的圆柱,二者接触面经机械磨制抛光后贴合,加 100 MPa 压力,之后在真空烧结炉中分别在 900 ℃和 1 000 ℃下进行 6 h 和 12 h 热扩散试验。利用 D8 ADVANCE X 射线衍射仪对合金进行扩散层的物相分析;利用 TESCAN VEGA 3XUM 型扫描电镜(SEM)及其自带的能谱仪(EDS)对合金进行形貌观察和成分分析。

收稿日期:2021-04-01;修改稿收到日期:2021-04-27
第一作者简介:贺进明,男,1982 年出生,高级工程师,内蒙古包头(014035),E-mail:121663365@qq.com
引用格式:贺进明,隋政,孙祎强,等. U-8Mo 合金与 Zr-4 合金的相容性研究[J]. 特种铸造及有色合金,2021,41(7):877-879.
HE J M, SUI Z, SUN Y Q, et al. Compatibility of U-8Mo alloy and Zr-4 alloy[J]. Special Casting & Nonferrous Alloys, 2021, 41(7):877-879.

2 试验结果及分析

2.1 Zr 侧扩散层 X 射线衍射分析

燃料元件体系中燃料相与包壳的相容性是制约燃料元件使用性能和寿命的重要因素,材料的界面扩散性质是反应材料相容性的重要指标。一般来说,相容性好的燃料/包壳材料,在燃料元件运行工况下,界面之间基本不会发生互扩散或扩散程度微弱,从而不会对材料本身性能造成严重的影响^[4],另一方面,从反应堆安全性



来讲,作为 Zr 包壳管不能破裂。因此,重点考察探究了 Zr 侧扩散层。

将 U-8Mo/Zr 扩散偶试样沿扩散界面方向分开露出 U-8Mo 和 Zr 的扩散层,对 Zr 侧扩散层进行物相分析,结果见图 1。可以看出,除了 900 °C × 6 h 外,试验中 U-8Mo 均有扩散至 Zr 层,扩散层存在 UO₂、Zr、Mo₂U₇、Mo、Mo₂Zr 等物相,未发现 Sn、Fe、Cr 相及其相产物。Zr 是 Zr 基体中的相,UO₂相可能是 U 扩散至扩散层与 O 反应,也可能是试样表面氧化所致。在 1 000 °C × 6 h 条件下,扩散的 Mo 与 Zr 形成了 Mo₂Zr 相扩

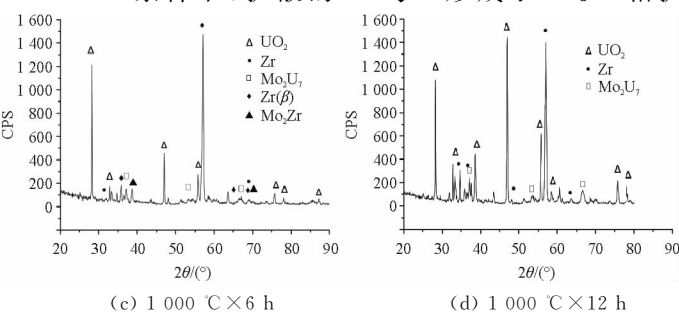


图 1 Zr 侧扩散层 XRD 图谱

Fig.1 XRD patterns of Zr diffusion layer

散层产物。

2.2 Zr 侧扩散层扫描电镜及能谱分析

经过衍射分析的 Zr-4 合金纵截面机械磨抛后进行 SEM 及 EDS 分析,结果见图 2~图 5。可以看出,在 900 °C × 6 h 处理后,界面发生轻微的扩散现象。从扩散层点、面能谱分析来看,只有 U 元素,无 Mo 元素。这说明界面扩散作用不明显,见图 2。当扩散 12 h 后,界面扩散现象明显,扩散层厚度约为 30 μm,扩散层呈枝状渗入 Zr 基体中,界面层 Zr 基体无明显孔洞或裂纹

产生;从点能谱分析结果可知,U、Mo 元素已扩散至 Zr 基体中,见图 3。在 1 000 °C × 6 h 处理后,从界面可以看到清晰的扩散层,且扩散层上端出现许多枝晶渗入到 Zr 基体中,形貌分析可以看出界面层 Zr 基体没有明显的空洞或裂纹产生。从点能谱分析来看,U、Mo 发生了明显的扩散,并且在扩散偶界面产生富集,见图 4。结合 XRD 分析结果,可见富集的 Mo 与 Zr 形成了 Mo₂Zr 物相。经 1 000 °C × 12 h 处理后,界面扩散层清晰明显,许多枝晶渗入到 Zr 基体中,界面层 Zr 基体没有明

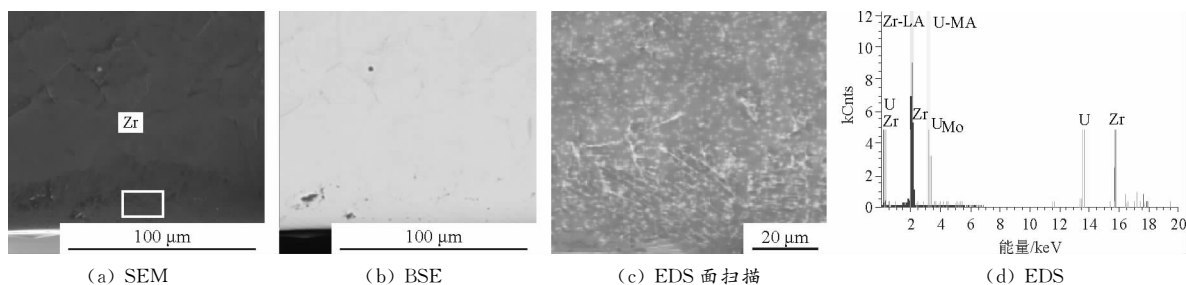


图 2 经 900 °C × 6 h 处理后合金中 Zr 侧扩散层 SEM 及 EDS

Fig.2 SEM images and EDS results of Zr diffusion layer treated at 900 °C for 6 h

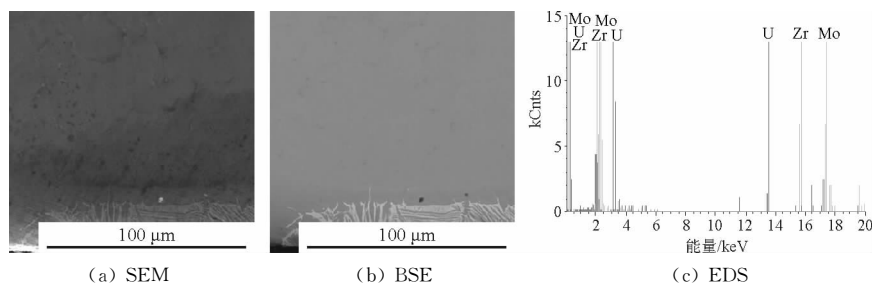


图 3 经 900 °C × 12 h 处理后合金中 Zr 侧扩散层 SEM 及 EDS

Fig.3 SEM images and EDS results of Zr diffusion layer treated at 900 °C for 12 h

显的空洞或裂纹产生,扩散层厚度约为 60 μm 。从点、面能谱分析来看,U、Mo 发生了明显的扩散。从界面至 Zr 基体侧,U、Mo 元素的含量逐渐降低,Zr 元素的含量

逐渐增加,且富集的 Mo 元素比 U 在 Zr 基体中扩散的要更深,这与 XRD 物相分析所组成的元素结果一致,见图 5。因此,可以推测 U 在 Zr 基体中以固溶体形式

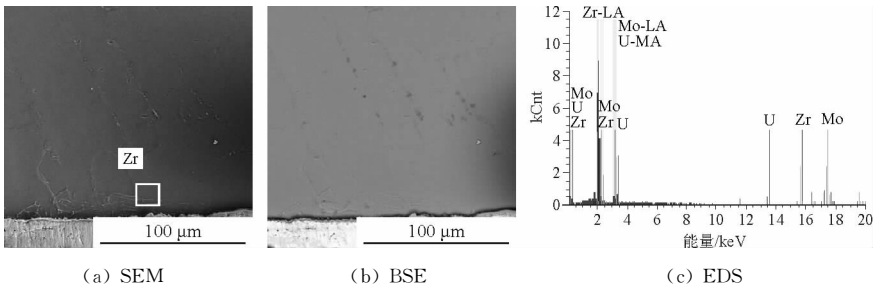
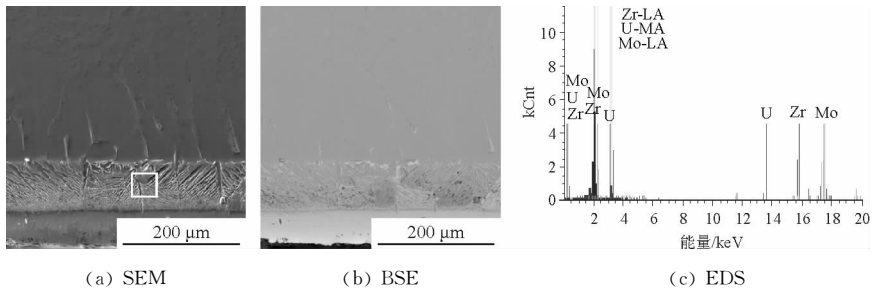


图 4 经 1 000 $^{\circ}\text{C} \times 6 \text{ h}$ 处理的合金中 Zr 侧扩散层 SEM 及 EDS

Fig.4 SEM images and EDS results of Zr diffusion layer treated at 1 000 $^{\circ}\text{C}$ for 6 h



(a) SEM (b) BSE (c) EDS

(d) EDS 面扫描 (e) Mo (f) Zr (g) U

图 5 经 1 000 $^{\circ}\text{C} \times 12 \text{ h}$ 处理的合金中 Zr 侧扩散层 SEM 及 EDS 面扫描

Fig.5 SEM images and EDS results of Zr diffusion layer treated at 1 000 $^{\circ}\text{C}$ for 12 h

存在。

金属的熔点越低,扩散激活能越小,原子越易迁移^[6]。U-8Mo 合金熔点(约 1 145 $^{\circ}\text{C}$)较 Zr-4 合金熔点(约 1 850 $^{\circ}\text{C}$)低,因此,U 和 Mo 原子相比 Zr 原子更容易发生迁移扩散。而 U、Mo 和 Zr 的原子半径分别为 0.154、0.136 和 0.160 nm,在 U 和 Mo 原子向 Zr 合金的扩散中,Mo 原子因具有较小的原子半径优先扩散,Mo 与 Zr 基体反应在 Zr 侧生成了 Mo_2Zr ,随着热处理温度升高、时间延长, Mo_2Zr 层的厚度增加,U 原子通过 Mo_2Zr 层向 Zr 基体扩散,相比而言,Mo 原子要比 U 原子在 Zr 基体中扩散的更深。

3 结 论

(1)在 U-8Mo/Zr4 扩散偶 Zr 侧 U、Mo 发生了明显的扩散现象,Mo 在 Zr 侧产生富集,且在高温下 U-8Mo 合金是以枝晶的形式渗入到 Zr 包壳中,随着温度

的升高扩散层厚度增加。

(2)在扩散层中没有发现裂纹和空洞,U-8Mo 合金与 Zr-4 包壳具有良好的相容性,U、Mo 元素向 Zr 基体扩散过程中 Mo 迁移速率较快,形成 Mo_2Zr 扩散层产物,U 以固溶体形式存在于 Zr 基体中。

参 考 文 献

[1] 尹昌耕.中国核动力院 U-Mo 合金燃料研究现状及进展[J].原子能科学技术,2009,43:389-393.

[2] 刘云明,陈建刚,刘超红,等.U-Mo 合金与 Zr 合金的相容性研究[J].核动力工程,2015,36(4):90-94.

[3] LEE C T, PARK J H, KIM T K, et al. Thermal stability of co-extruded U-Zr/Zr-Nb alloys[J]. Journal of Nuclear Materials, 2008, 373: 275-279.

[4] 陈建刚,尹昌耕,刘云明,等.U-Mo 合金与 Zr-4 合金的扩散层性质研究[J].核科学与工程,2016, 3(6): 771-775.

[5] 刘云明,陈建刚,刘超红,等.U-10Mo 合金与 N18 锆合金的相容性研究[J].中国核科学技术进展报告,2015(4): 332-337.

[6] 崔忠圻.金属学与热处理[M].北京:机械工业出版社,1998.

(编辑:刘晨辉)