

# 氢化物对 N18 锆合金原位拉伸断裂行为的影响

刘锦云<sup>1</sup>, 蒲霞<sup>1</sup>, 孙超<sup>2</sup>, 查五生<sup>1</sup>

(1. 西华大学, 四川 成都 610039)

(2. 中国核动力研究设计院 核燃料及材料国家重点实验室, 四川 成都 610041)

**摘要:** 对电解渗氢后的 N18 锆合金进行了扫描电镜下原位拉伸试验, 观察了裂纹在氢化物中的萌发与扩展过程, 研究了氢化物对拉伸性能和断裂行为的影响。研究发现, 拉伸时试样会发生颈缩, 基体断口上存在大量韧窝, 呈韧性断裂, 使渗氢后的 N18 锆合金具有一定的塑性。小裂纹在带状氢化物簇中萌发并迅速扩展, 但基体对小裂纹的扩展有钝化作用, 使小裂纹转化成孔洞。断口表面上, 脆性氢化物与基体之间还会形成二次裂纹, 其形状和分布与氢化物的形状和分布相似。孔洞与二次裂纹都会使含氢锆合金的塑性降低。

**关键词:** 锆合金; 氢化物; 拉伸原位观察; 韧性断裂; 二次裂纹

中图分类号: TL341

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)03-0711-05

N18 锆合金是一种新型的核反应堆燃料元件的包壳材料, 具有较小的热中子吸收截面和优良的力学性能。在反应堆运行过程中, 锆合金会发生吸氢现象<sup>[1]</sup>, 且所吸收的氢大部分以氢化物的形式析出<sup>[2-4]</sup>。氢化物的存在对锆合金的力学性能有显著影响, 如塑性降低、强度提高等<sup>[5,6]</sup>。而对于氢化物本身的力学性能, 存在不同的认识, 一些研究认为氢化物是完全脆性的<sup>[7]</sup>, 另一些则认为氢化物能随基体产生较大的塑性变形<sup>[8]</sup>。

近年来, 对国产 N18 锆合金的氢致延迟开裂行为和疲劳行为的研究<sup>[9,10]</sup>, 以及 Zr-4 合金的原位拉伸变形研究<sup>[11]</sup>均有报道, 但对渗氢后 N18 锆合金的拉伸变形过程进行原位观察, 分析氢化物的存在对 N18 锆合金拉伸变形、断裂行为的研究未见报道。本研究采用扫描电镜下原位拉伸试验方法, 在研究氢化物影响拉伸变形伸长率的基础上<sup>[12]</sup>, 分析裂纹在氢化物中的萌发与扩展、试样的断裂性质、断口形貌等, 研究氢化物对含氢 N18 锆合金断裂行为的影响。

## 1 实验

本实验所用材料为再结晶状态的 N18 锆合金板材, 厚度 4.7 mm, 其化学成分以 Zr 为主, 含有少量 Sn、Nb、Fe 等元素。线切割加工的拉伸试样如图 1 所示, 拉伸方向与板材的轧制方向一致,  $L=18$  mm,  $B=4.5$  mm,  $b_0=1.5$  mm,  $t_0=0.8$  mm,  $r=1.5$  mm。

切割后的试样, 表面经过机械研磨、抛光、酸洗

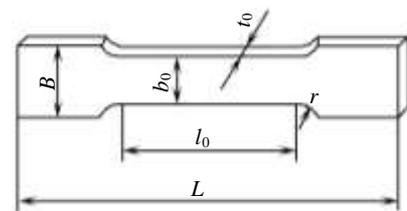


图 1 拉伸试样

Fig.1 Specimen used in *in situ* tension

后, 采用电解渗氢法渗氢, 通过控制渗氢时间来控制试样中的氢含量。试样中的氢含量用 HORIBA 公司的 EMGA-621W 型定氢仪测定。在 S-3400N 型扫描电镜配置的 Gatan 公司的 Deben Microtest V5.3.53 拉伸台上, 进行原位单向拉伸变形, 其最大载荷为 2000 N, 采用恒应变速率模式。变形过程中裂纹的萌生与扩展, 采用扫描电镜原位观察, 实验数据同时被记录。拉伸断口的形貌也用扫描电镜观察。

## 2 结果与讨论

### 2.1 含氢试样的原位拉伸性能

图 2 为 N18 锆合金未渗氢及氢含量 623  $\mu\text{g/g}$  试样的原位拉伸曲线、最大抗拉强度及其对应的伸长率。未渗氢试样拉伸断裂前, 经历了弹性变形和塑性变形阶段, 是典型的弹塑性材料, 伸长率达到了 25.9%, 表明其具有良好的塑性; 含氢 623  $\mu\text{g/g}$  的试样, 拉伸

收稿日期: 2016-03-20

基金项目: 四川省教育厅重点项目 (10ZA097)

作者简介: 刘锦云, 女, 1963 年生, 硕士, 教授, 西华大学材料科学与工程学院, 四川 成都 610039, E-mail: liujun@163.com

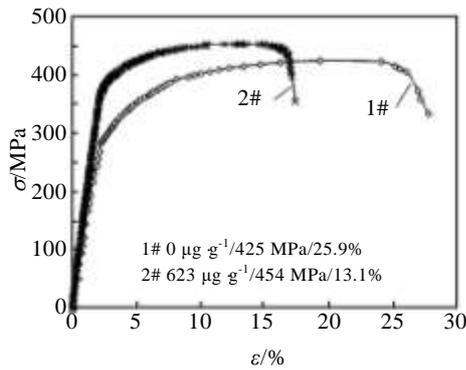


图 2 N18 锆合金原位拉伸曲线

Fig.2 Stress-strain curves of *in situ* tension

曲线同样经历了弹性变形和塑性变形阶段，也是弹塑性材料，抗拉强度略有增大，伸长率显著下降，但伸长率仍然达到了 13.1%，具有较好的塑性。研究认为<sup>[12]</sup>，拉伸过程中的柱面滑移和锥面、斜面的多滑移，使密排六方结构的锆合金具有良好的塑性；对于含氢试样，滑移带能够顺利穿过单个氢化物和稀疏分布的带状氢化物簇，氢化物对滑移的阻碍作用小，且能随基体产生较大的塑性变形，使试样仍然具有一定的塑性。

### 2.2 含氢试样原位拉伸的断裂性质

图 3 为含氢试样原位拉伸前、中、后的形貌。未

拉伸试样的宽度  $b_0$  为 1.5 mm，表面较光滑，分布有与轧制方向一致的条状氢化物；随拉伸的进行，试样表面变得粗糙，氢化物变得平直，试样宽度由 1.5 mm 缩小至 1.0 mm，且出现了缩颈；继续拉伸，试样在缩颈处断裂，断口粗糙，有剪切唇。含氢试样发生了颈缩，说明拉伸过程中其产生了较大的塑性变形。

图 4a、4b 分别为未渗氢和渗氢试样的拉伸断口形貌。未渗氢试样的断口表面有大量的韧窝，说明锆合金的断裂方式是韧性断裂，试样具有良好的塑性；渗氢试样的断口上，除了分布有条状或近乎圆形的孔洞外，基体上也存在大量韧窝，说明基体的断裂方式也为韧性断裂，试样同样具有较好的塑性。

### 2.3 裂纹萌生及扩展过程的原位观察

图 5 为含氢试样裂纹萌生及扩展的原位观察结果，SEM 照片拍摄时间间隔 1 min。从图 5a 可见，带状氢化物簇中，多处萌生了张开型小裂纹，这些小裂纹多数萌生于缺陷相对较多的晶界相交位置，形状呈梭形。随着拉伸过程的进行，裂纹沿垂直于拉伸主应力方向迅速扩展，长度与深度都迅速扩大，相互连接，尺寸增大，并向基体迅速扩展。并且，在氢化物簇的其它位置又萌发出了新的小裂纹，如图 5b~5c 所示。当裂纹尖端扩展至基体与氢化物簇界面时，基体的塑性钝化作用使裂纹尖端变圆，裂纹扩展速度大大下降，

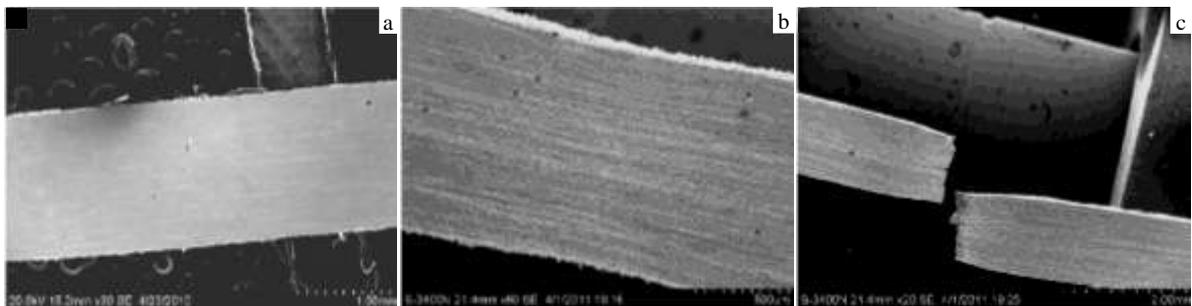


图 3 试样的拉伸变形与缩颈

Fig.3 Images of necking and elongation before (a), during (b), and after (c) *in situ* tension

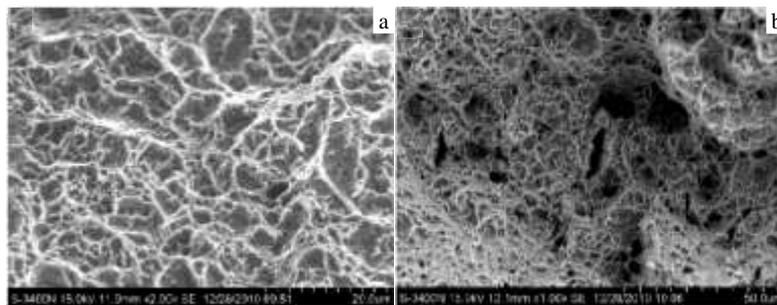


图 4 未渗氢和渗氢试样的断口表面形貌

Fig.4 Fracture surface morphologies of samples without hydrogen (a) and with hydrogen (b)

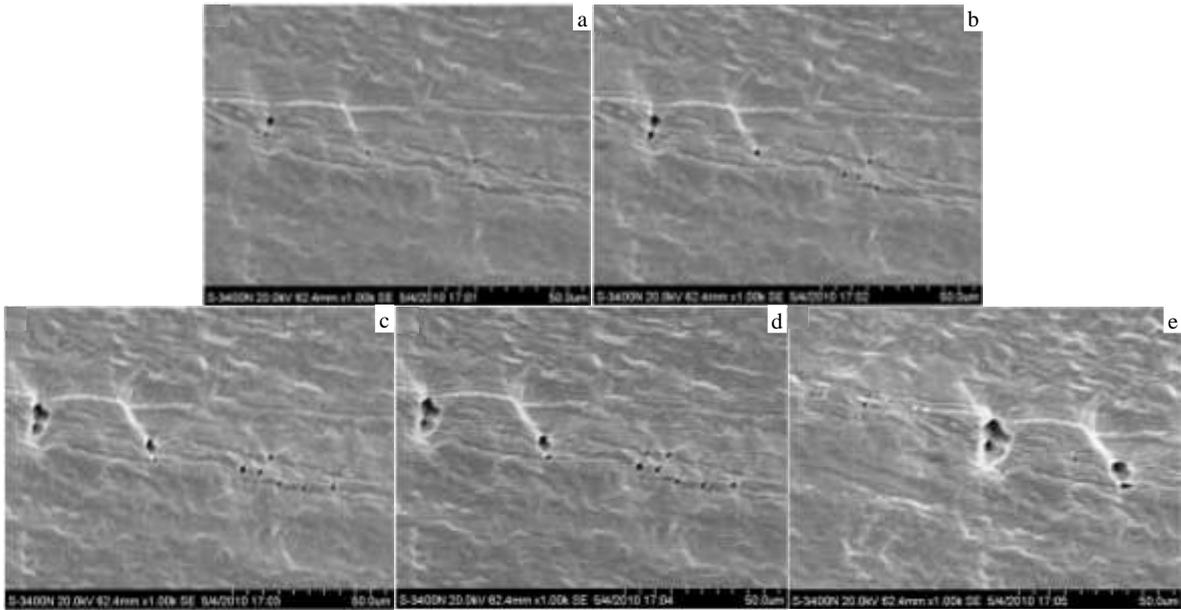


图 5 裂纹扩展过程

Fig.5 SEM images of crack growing process during *in situ* tension with the stretch strain increasing from Fig.5a to Fig.5e

甚至停止长大，随拉伸变形量的增加，演变成近乎圆形的孔洞，如图 5d~5e 所示。

小裂纹最先出现于氢化物簇中，说明氢化物簇的塑性比基体差；裂纹扩展速度快，说明裂纹尖端的塑性区尺寸小，氢化物的断裂韧性低。由于基体的良好塑性，裂纹尖端发生了钝化，大大延缓了裂纹的扩展，使试样不会产生脆性断裂，对于提高合金的抗破裂能力和塑性，是非常有利的。但试样中的孔洞破坏了基

体的连续性，减少了试样的有效承载面积，将会导致合金塑性的降低。部分裂纹还可能继续扩展，成为基体断裂的裂纹源。

### 2.4 断口二次裂纹及氢化物形貌

图 6a~6d 示出了不同氢含量拉伸断口的形貌。无氢试样断口表面是连续的，表面存在大量韧窝。图 6b~6d 的含氢试样断口，韧性断裂的基体上虽然分布有大量韧窝，但基体是不连续的，被垂直于拉伸方向

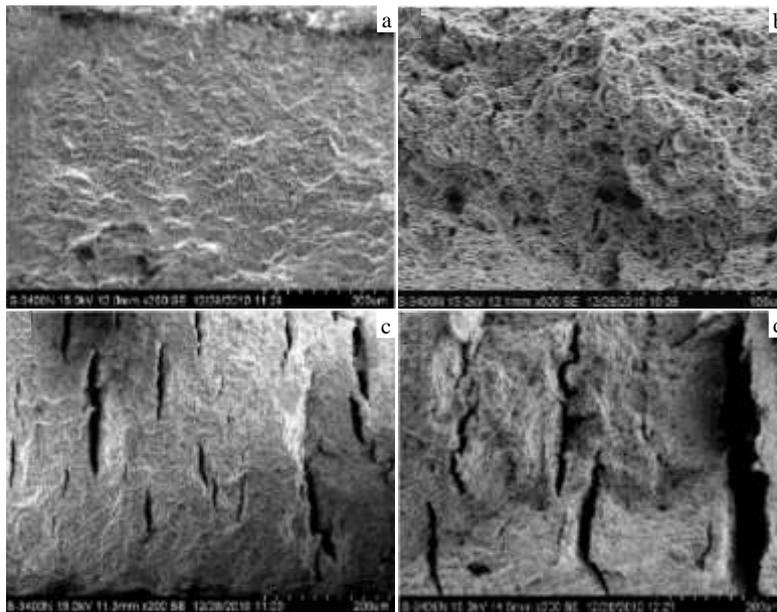


图 6 不同氢含量的拉伸断口上的二次裂纹

Fig.6 Secondary cracks of fracture with different hydrogen contents: (a) 0 μg/g, (b) 257 μg/g, (c) 414 μg/g, and (d) 623 μg/g

的二次裂纹分割开来,图 3c 中也可以观察到这类二次裂纹。二次裂纹的数量、尺寸大小及分布状况与氢含量有直接的关系。当氢含量较低时,二次裂纹数量较少,尺寸也较小,分布的方向性不明显,与试样表面氢化物的形状与分布相似。随含氢量的增加,二次裂纹的数量明显增多,尺寸明显增大,单个的裂纹有越过基体相互连接的趋势,当氢含量达到  $623 \mu\text{g/g}$  时,多个二次裂纹相互连接,裂纹宽度明显增加,裂纹的位置、方向、数量与尺寸大小等分布状况与试样表面氢化物簇的分布状况,存在一定的对应关系。

图 7 是断口表面二次裂纹中的氢化物形貌,分布在二次裂纹内的氢化物与基体有明显区别。裂纹旁的基体带有大量的韧窝,属于韧性断裂,而氢化物断裂成若干多边形小块,断裂界面分明,断裂线光滑、平直,表现出了典型的脆性断裂特征。

含氢试样原位拉伸过程中,当颈缩发生后,缩颈处的应力就由单向拉应力状态转变为三向拉应力状态,即试样的长、宽、厚 3 个方向均受到拉应力作用。宽度与厚度方向的应力,与带状氢化物簇垂直,有将氢化物与基体撕裂的趋势。由于氢化物是脆性的,它与基体之间结合力不强,当拉应力足够大时,在氢化物与基体的结合界面处就会形成裂纹,且裂纹沿氢化物簇的长度方向不断扩展至整个界面,从而形成了与氢化物的数量、大小与分布状态相似的二次裂纹。由于三向拉应力状态出现在拉伸的颈缩阶段,二次裂纹的萌发与扩展也就临近试样断裂阶段,对整个试样伸

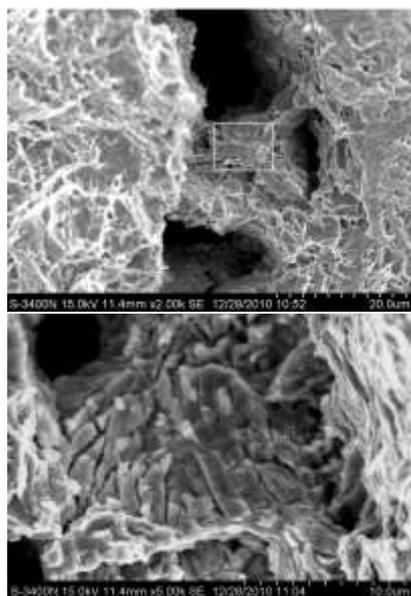


图 7 二次裂纹中氢化物的形貌

Fig.7 SEM morphologies of hydrides in secondary cracks

长率的影响并不严重。

### 3 结 论

1) 渗氢后的 N18 锆合金仍然是弹塑性材料,具有较好的塑性,原位拉伸时会发生颈缩,断口上存在大量韧窝,基体呈韧性断裂。

2) 分布在基体中的带状氢化物簇,拉伸过程中会出现数量众多、扩展迅速的小裂纹,但基体对小裂纹有钝化作用,减缓了裂纹的扩展。小裂纹转化成的孔洞,会破坏基体的连续性,导致合金的塑性降低。

3) 脆性氢化物与基体之间结合不够,含氢试样拉伸断口上会出现二次裂纹,且二次裂纹的数量、大小和分布状态与氢化物的数量、大小和分布状态相似,这也使含氢 N18 锆合金的塑性降低。

#### 参考文献 References

- [1] Yang Fanglin(杨芳林), Zhang Jianjun(张建军), Song Qizhong(宋启忠). *Rare Metals(稀有金属)*[J], 1999, 23(3): 236
- [2] Tang Rui(唐睿), Yang Xiaoxue(杨晓雪). *Chinese Journal of Materials Research(材料研究学报)*[J], 2009, 23(6): 635
- [3] Steinbrück Martin. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2004, 334(1): 58
- [4] Une K, Ishimoto S. *Journal of Nuclear Material*[J], 2003, 322(1): 66
- [5] Zhou Jun(周军), Li Zhongkui(李中奎), Zhang Jianjun(张建军) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2008, 37(12): 2244
- [6] Wang Ruihong, Ding Xiangdong, Xiao Lin et al. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2002, 12: 544
- [7] Kuroda M, Yoshioka K, Yamanaka S et al. *Journal of Nuclear Science and Technology*[J], 2000, 37: 670
- [8] Wang Ruihong(王瑞红), Ding Xiangdong(丁向东), Liu Gang(刘刚) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2003, 32(12): 1045
- [9] Sun Chao(孙超), Tan Jun(谭军), Ying Shihao(应诗浩) et al. *Acta Metallurgica Sinica(金属学报)*[J], 2009, 45(5): 541
- [10] Tan Jun(谭军), Ying Shihao(应诗浩), Li Cong(李聪) et al. *Nuclear Power Engineering(核动力工程)*[J], 2006, 27(5): 53
- [11] Ding Xiangdong(丁向东), Wang Ruihong(王瑞红), Liu Gang(刘刚) et al. *Acta Metallurgica Sinica(金属学报)*[J], 2003, 39(3): 267
- [12] Liu Jinyun(刘锦云), Pu Xia(蒲霞), Sun Chao(孙超) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2017, 46(2): 411

## Effects of Hydrides on Fracture Behavior of N18 Zirconium Alloy during *in situ* Tension

Liu Jinyun<sup>1</sup>, Pu Xia<sup>1</sup>, Sun Chao<sup>2</sup>, Zha Wusheng<sup>1</sup>

(1. Xihua University, Chengdu 610039, China)

(2. National Key Laboratory for Nuclear Fuel and Materials, Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610041, China)

**Abstract:** By *in situ* tension for the N18 zircaloy, which had been charged hydrogen by an electrolytic hydrogenation method, the initiating and developing of cracks inside hydrides were observed with SEM. The effects of hydrides on the tensile properties and the fracture behaviors were investigated. The results show that necking in tension occurs, and many dimples exist on the matrix fracture surface, which means that ductile fracture happens during *in situ* tension, and that the N18 zircaloy has ductility. The cracks are naturally initiated from strip hydrides clusters and propagate rapidly inside hydrides, but are blunted by plastic matrix, and become to holes. There are many secondary cracks between matrix and brittle hydrides on the fracture surface. Both the shape and distribution of the secondary cracks are similar to those of hydrides. The holes and secondary cracks reduce the ductility of the N18 zircaloy with hydrogen.

**Key words:** zirconium alloy; hydrides; *in situ* SEM observation; ductile fracture; secondary cracks

---

Corresponding author: Zha Wusheng, Ph. D., Professor, School of Material Science and Engineering, Xihua University, Chengdu 610039, P. R. China, E-mail: zhawusheng684@hotmail.com