

钨靶件试样的热等静压工艺试验研究

许咏丽, 张金权, 李化青

(中国原子能科学研究院 中国实验快堆工程部, 北京 102413)

摘要: 分别选用锆和不锈钢作为 ADS 固体钨靶的包壳材料, 采用真空电子束焊制备钨-锆及钨-不锈钢的小样品, 在 1 200、1 300、1 400 °C 和 180 MPa 下研究它们的热等静压(HIP)工艺条件。对 HIP 后的试样分别进行结合面微观观察、扩散层厚度、成分及其显微硬度的测试分析。结果表明: 钨-锆及钨-不锈钢包壳管均结合紧密, 未见间隙或微裂纹, 在 1 200 和 1 300 °C 下也未见钨晶粒长大; 在钨-锆包壳管结合面处主要是锆向钨扩散, 而钨向锆扩散则很少, 在本试验条件下, 扩散层深度为 6~13 μm ; 钨-不锈钢包壳管结合面处钨和铁的扩散明显, 扩散层深度约为 13 μm , 铬和镍的扩散较少, 钨-锆及钨-不锈钢结合面的显微硬度测试结果也表明, 在钨-锆及钨-不锈钢的结合面上存在着扩散层; 在含吸氧材料 Zr 的 1 300 °C、180 MPa 下进行等静压后, 不锈钢包壳管部分区域熔化, 因此, W-S. S. 的 HIP 不能在含 Zr 的条件下进行, 而不含 Zr 的 1 200 °C、180 MPa 才适于钨-不锈钢, 1 300 或 1 400 °C、180 MPa 适合于钨-锆。

关键词: 钨靶; 包壳管; 热等静压; 结合面; 扩散层; 显微硬度

中图分类号: TG174. 33

文献标识码: A

文章编号: 1000-6931(2006)06-0641-05

Investigation of Hot Iso-Static Press Process for Tungsten Target Samples

XU Yong-li, ZHANG Jin-quan, LI Hua-qing

(China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-92, Beijing 102413, China)

Abstract: Zr and stainless steel(S. S.) were selected respectively as the cladding materials of W target. The e-beam weld was used to prepare the W-Zr and W-S. S. small samples for hot iso-static press(HIP) process. The technology parameters of HIP were investigated at 1 200, 1 300, 1 400 °C and 180 MPa, respectively. The micro-morphology of the interface, diffusion depths and composition as well as their micro-hardness were observed and determined. The bonding of W-Zr and W-S. S. is very well under the testing conditions. There is no any pore or micro-crack in the interface, and there is no grain growth of W below 1 400 °C either. The diffusion of Zr to W at the interface of W-Zr is preferred during HIP process, and the diffusion depths under testing conditions are 6-13 μm . The diffusion of W and Fe is considerable at the interface of W-S. S. Its depth is about 13 μm , and the diffusion of Cr and Ni is small. The hardness at the inter-

face of W-Zr and W-S. S. shows that a diffusion layer is present for both interface. A part of stainless steel cladding was melted after HIP contained the oxygen absorber Zr at 1 300 °C and 180 MPa. Therefore, 1 200 °C and 180 MPa is suitable for W-S. S. without Zr, but 1 300 or 1 400 °C and 180 MPa is better for W-Zr.

Key words: tungsten target; cladding; hot iso-static press; interface; diffusion layer; micro-hardness

在加速器驱动的次临界系统(ADS)中,中子产生靶有两种类型:液态金属靶和固体金属靶。固体金属靶一般采用 W。在无辐照场的水中,钨与水的相容性较好,但在辐照场中,辐照脆化了的钨会因流动水的冲刷而造成剥蚀。因此,需用另一种抗辐照、抗腐蚀、中子学性能良好的金属作为钨靶体的包壳^[1-3]。本工作选用钨合金和不锈钢作为钨靶体的包壳,这不仅因他们是水冷堆和快堆的燃料棒包壳材料,具有良好的抗腐蚀、抗辐照性能和所要求的中子学性能,还因 W-Zr、W-S. S. 间有较好的固溶性。

为提高钨靶件的使用寿命,要求包壳能够将钨靶体的热量高效、快速地传递给冷却剂。这样,钨靶体与包壳必须紧密结合,不能有任何气隙。根据国外的研究,热等静压(HIP)工艺是达到这种要求的最有效方法^[3,4],它能使钨靶体与包壳间的结合达到扩散焊的程度,从而消除钨靶体与包壳间的间隙,使包壳的传热效率达到最高。本工作采用小样品分别研究 W-Zr 及 W-S. S. 的 HIP 工艺条件,旨在为我国 ADS 试验装置的钨靶件制造提供工艺参数。

1 HIP 样品的制备

1.1 试验材料成分

抛光钨棒,含 W 99.9%。钨包壳管(PWR 用的 M5):Zr, 98.88%;Nb, 1.0%;O, 0.12%。不锈钢包壳管(为 FBR 试制的包壳管):C, 0.040 4%;Cr, 16.8%;Ni, 12.5%;Mn, 1.67%;Si, 0.73%;Mo, 3.75%;Ti, 0.63%;S, 0.007 8%;P, 0.016%;Fe, 余量。

1.2 试样尺寸

抛光钨棒, $\phi 8 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 、 $\phi 5 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$;钨包壳管, $\phi 9.6 \text{ mm} \times 0.75 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$;不锈钢包壳管, $\phi 60 \text{ mm} \times 0.4 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 。

1.3 试样的制备

1.3.1 包壳管表面氧化膜的清除与抛光 钨包壳管表面氧化膜的清除与抛光的溶液为 5%HF+39%HNO₃+H₂O,温度为 30~39 °C,时间为 1~2 min,水冲洗,去离子水沸腾。不锈钢包壳管表面氧化膜的清除与抛光的溶液为 4% HCl+1% HNO₃+0.5% H₂SO₄+5%CH₃COOH+H₂O,温度为 80~100 °C,时间约 2 min,水冲洗。

1.3.2 电子束焊工艺条件 焊接电压, 60 kV;焊接电流, 6 mA(对 S. S. 包壳管), 8 mA(对 Zr 包壳管);真空度, $2.66 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ (对 S. S. 包壳管), $6.66 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ (对 Zr 包壳管);工件转速, 18 r/min。

制备的 HIP 试样外观如图 1 所示。



图 1 HIP 试样

Fig.1 HIP samples

a: W-Zr, 1 300 °C, 180 MPa; b: W-S. S., 1 200 °C, 180 MPa; c: W-Zr, 1 400 °C, 180 MPa

2 HIP 工艺参数

2.1 钨-钨靶件试样

钨-钨包壳管的 HIP 工艺参数列于表 1。为防止钨包壳管在 HIP 过程中氧化,将制备好的钨-钨包壳管试样置于 HIP 炉膛的 Al₂O₃ 坩锅中,并用海绵钨将试样埋好,再用钨片作坩锅盖,即用海绵钨和钨片作吸氧材料,以保护钨包壳管。HIP 设备开机前,先用 5N-6 氩气(氩气

纯度 99.999 6%)冲洗炉膛及炉膛中的所有物件,冲洗 3 次后,升温加压至所需温度与压力。

2.2 钨-不锈钢靶件试样

钨-不锈钢包壳管的 HIP 工艺参数列于表 2。1 300 °C 下的 HIP 工艺条件与钨-锆包壳管的相同;1 200 °C 下的 HIP 工艺不加吸氧材料,Al₂O₃ 坩锅也不加盖。开机前的氩气冲洗条件与钨-锆包壳管的相同。

3 结果分析

3.1 结合面的微观形貌

3.1.1 钨-锆包壳管 经 HIP 工艺的钨-锆包壳管的结合面微观形貌示于图 2。可见,本试验条件下,钨-锆结合紧密,未见间隙或微裂纹,在 1 200 和 1 300 °C 下未见钨晶粒长大,但在 1 400 °C 下钨的晶粒变大。在钨-锆的结合处,其扩散层明显可见(图中箭头所指),扩散层深度随 HIP 温度的升高而增加。

3.1.2 钨-不锈钢包壳管 经 HIP 工艺的钨-

不锈钢包壳管的结合面微观形貌示于图 3。可见,在 1 200 和 1 300 °C 下等静压后,钨-不锈钢结合紧密,未见间隙或微裂纹。在 1 200 °C、180 MPa 下,扩散层明显可见(图 3a 箭头所指),而在 1 300 °C、180 MPa 和以锆作为吸氧材料的等静压条件下,不锈钢包壳管的部分区域熔化,未见扩散层(图 3b)。这是由在此温度下采用锆作为吸氧材料所致。从铁-锆、镍-锆的二元合金相图可看出,不锈钢中的铁与锆、镍与锆在高温下可分别形成 FeZr₂ 和 NiZr₂ 金属间相,其熔点分别为 928 和 960 °C^[5],因而使不锈钢熔化,它们向钨的扩散受到抑制。对于 1 200 °C 下的等静压试验,因未采用吸氧材料锆,铁向钨的扩散明显,不锈钢也未熔化。

3.2 结合面扩散层的成分及深度

钨-锆包壳管结合面的线扫描分析示于图 4。由图 4 可见,结合面处(两条曲线的交点处为原始界面)钨一侧有锆,在 1 200、1 300 和 1 400 °C 下,锆的扩散深度分别为 6、7 和 11 μm;

表 1 W-Zr 包壳管的 HIP 工艺参数

Table 1 HIP parameters of HIP for W-Zr cladding

温度/°C	压力/MPa	保温时间/h	升温速率/(°C · h ⁻¹)	吸氧材料	容器	覆盖气体
1 200	180	4	300	海绵锆	Al ₂ O ₃ 坩锅+锆片盖	5N-6 氩气
1 300	180	4	300	海绵锆	Al ₂ O ₃ 坩锅+锆片盖	5N-6 氩气
1 400	180	4	300	海绵锆	Al ₂ O ₃ 坩锅+锆片盖	5N-6 氩气

表 2 W-S. S. 包壳管的 HIP 工艺参数

Table 2 HIP parameters of HIP for W-S. S. cladding

温度/°C	压力/MPa	保温时间/h	升温速率/(°C · h ⁻¹)	吸氧材料	容器	覆盖气体
1 200	180	4	300	无吸氧剂	无盖 Al ₂ O ₃ 坩锅	5N-6 氩气
1 300	180	4	300	海绵锆	Al ₂ O ₃ 坩锅+锆片盖	

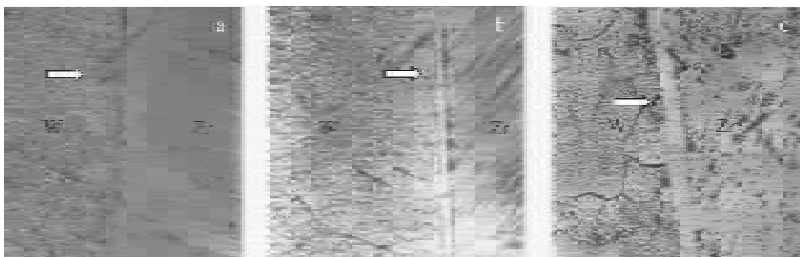


图 2 钨-锆的结合面微观形貌(放大 400 倍)

Fig. 2 Micro-morphologies of interface for W-Zr cladding

a——1 200 °C; b——1 300 °C; c——1 400 °C

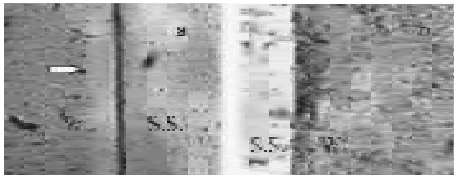


图3 钨-不锈钢结合面的
微观形貌(放大400倍)

Fig.3 Micro-morphologies of interface
for W-S.S. cladding
a—1 200 °C; b—1 300 °C

在钨一侧的钨的扩散深度分别为1、2和2 μm ，总扩散深度为7、9和13 μm (表3)。这说明，钨向钨扩散的扩散系数大于钨向钨的扩散系数，且在本试验温度范围内，钨的扩散基本不受温度影响，而钨的扩散则随温度升高而增大。

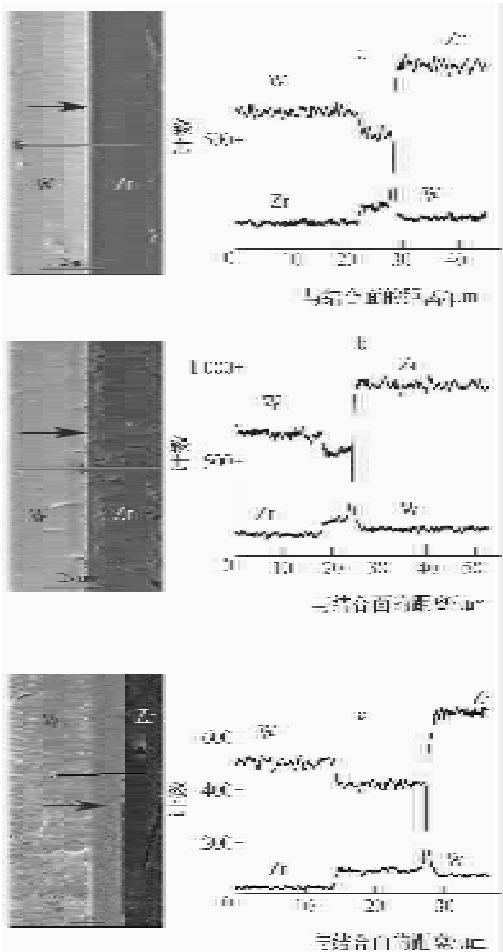


图4 钨-钨结合面的线扫描分析

Fig.4 Line scanning at interface of W-Zr cladding
a—1 200 °C; b—1 300 °C; c—1 400 °C

表3 钨-钨结合面的扩散层深度

Table 3 Diffusion depths
at interface of W-Zr cladding

HIP 温度/°C	扩散层深度/ μm
1 200	7
1 300	9
1 400	13

钨-钨包壳管结合面的线扫描分析示于图5。图5显示，钨和铁的扩散明显，扩散层深度约为13 μm (图中箭头所指)，其中，铁的扩散深度约为12 μm ，钨和钨的扩散深度也为12 μm ，但其量较少，钨的扩散深度为1 μm 。

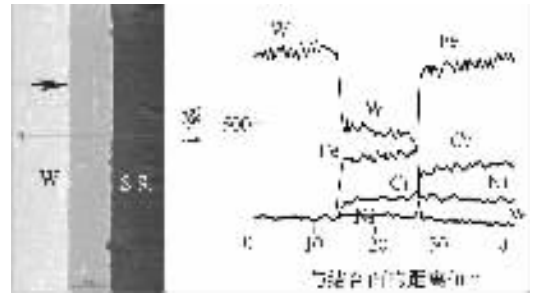


图5 1 200 °C时钨-钨包壳管
结合面的线扫描分析

Fig.5 Line scanning at interface
of W-S.S. cladding at 1 200 °C

3.3 显微硬度

钨-钨结合面的显微硬度测试结果显示，扩散层主要在钨一侧，钨一侧的扩散层不明显，这与线扫描分析结果相符。在本试验温度下，扩散层的显微硬度均有一峰值(图6a)，这是相互扩散的钨和钨在扩散层中形成钨-钨金属间化合物所致。从W-Zr二元合金相图可知，当温度低于2 160 °C时，一定比例的W/Zr会析出 W_2Zr 金属间相^[5]，其硬度较高。另外，在1 400 °C时，钨基体的显微硬度明显高于其它两种温度下的显微硬度，其原因尚待进一步研究。

从图6b可知：在钨-钨的扩散层中，显微硬度出现一峰值。这是相互扩散的铁和钨在结合面上形成铁-钨金属间化合物所致。从铁-钨的二元合金相图可知，在约1 040 °C时，钨和

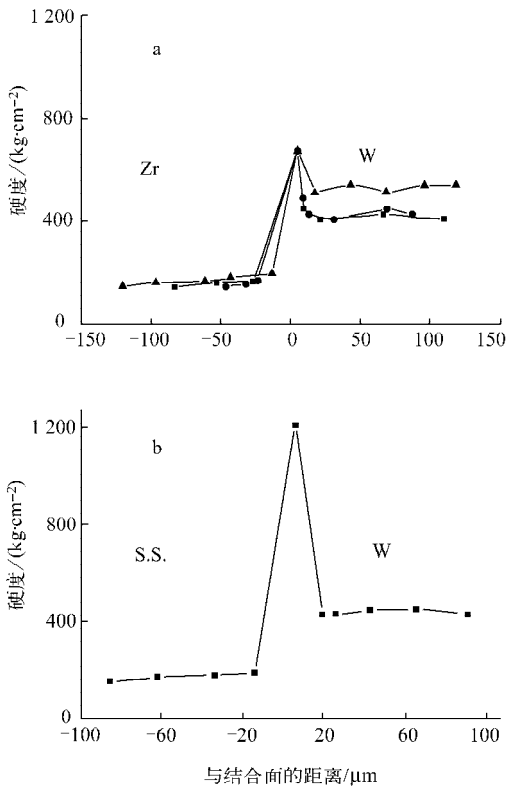


图6 钨与包壳管结合面的显微硬度

Fig. 6 Micro-hardness at interface of W-cladding

a——钨-锆; b——钨-不锈钢

■——1 200 °C; ●——1 300 °C; ▲——1 400 °C

铁形成 Fe_2W 金属间相^[5],其硬度很高。由此也说明,在不锈钢的组分元素中,铁向钨的扩散最多,这一结果与线扫描分析结果一致。

4 初步结论

1) 在本试验条件下,钨-锆及钨-不锈钢包壳管间的结合紧密良好,未见间隙或微裂纹,也未见钨的晶粒长大,在 1 300 和 1 400 °C、180 MPa 等静压条件下有较深的扩散层,这应是钨-锆结合的最佳条件。在 1 300 °C、180 MPa,以锆作为吸氧材料的等静压条件下,不锈钢包壳管的部分区域熔化,而在 1 200 °C、180 MPa 和不加锆情况下,钨-不锈钢不仅结合

优良,且有较深的扩散层,因此,后者应是钨-不锈钢的最佳 HIP 条件。

2) 钨-锆包壳管结合面的线扫描分析表明,在 1 200、1 300 和 1 400 °C 下,钨一侧的锆扩散深度分别为 6、7 和 11 μm ;在锆一侧的钨扩散深度分别为 1、2 和 2 μm ,总扩散深度为 7、9 和 13 μm 。钨-不锈钢包壳管结合面的扩散层深度约为 13 μm ,其中,铁向钨的扩散深度约为 12 μm ,钨和镍的扩散深度也为 12 μm ,但其量较少,而钨向不锈钢的扩散深度为 1 μm 。

3) 在本试验温度范围内,扩散层的显微硬度均有一峰值,这是相互扩散的铁和钨、锆和钨分别在结合面上形成铁-钨、锆-钨金属间化合物所致。

本工作利用北京有色金属研究总院的 HIP 设备进行,其间得到楚建新研究员及其组内成员的大力支持与帮助,对此谨表衷心感谢。

参考文献:

- [1] Ryutaro HINO and Target Development Group Center for Neutron Science. Target R&D at JAERI[C]//Proceedings of the 3rd Workshop on Neutron Science Project-Science and Technology in the 21st Century Opened Intense Spallation Neutron Source. Tokai, Japan:JAERI, 1988:83-92.
- [2] MICHIIHIRO F. Target R&D for the JHF N-Arena[C]// Proceedings of the 3rd Workshop on Neutron Science Project-Science and Technology in the 21st Century Opened Intense Spallation Neutron Source. Tokai, Japan:JAERI, 1988:100-106.
- [3] Anon. Accelerator and target developments (ISIS project—Accelerator and target station 5) [R]. UK;Rutherford Laboratory, 2000.
- [4] MASAYOSHI K, KENJI K, HIROAKI K, et al. Fabrication of a tantalum-clad tungsten target for KENS[J]. J Nucl Mater,2001,296:312-320.
- [5] 长崎诚三,平林真. 二元合金状态图集[M]. 刘安生译. 北京:冶金工业出版社,2004:61,62,240,294.