

Zr-4 合金与 H13 模具钢的界面换热行为研究

倪 嘉^{1,2}, 王 练³, 张志豪^{1,2}, 谢建新^{1,2}

(1. 北京科技大学 新材料技术研究院, 北京 100083)

(2. 材料先进制备技术教育部重点实验室, 北京 100083)

(3. 国核宝钛铝业股份公司, 陕西 宝鸡 721013)

摘 要: 测定了界面有、无玻璃润滑剂条件下 Zr-4 合金和 H13 模具钢的界面接触温度随接触时间的变化曲线, 在此基础上分析了界面换热特征, 获得了界面换热系数随初始界面温度变化的函数式。结果表明, 玻璃润滑剂可有效减缓 Zr-4 合金与 H13 钢的界面传热, 当 Zr-4 合金和 H13 钢的初始界面温度分别为 700 和 470 °C 时, 有玻璃润滑剂时 Zr 合金表面温度达到稳定的时间约为 16.3 s, 该时间段内相应的界面换热系数随实验时间的延长由 226 W/(m²·°C)增大到 2166 W/(m²·°C), 无润滑剂时 Zr 合金表面温度达到稳定的时间约为 7.7 s, 该时间段内界面换热系数由 250 W/(m²·°C)增大到 2700 W/(m²·°C)。采用本研究确定的换热系数随温度变化的关系式进行热交换模拟可以获得较高的模拟精度, 模拟与实验结果的最大误差约为 4.5%。

关键词: Zr-4 合金; 模具钢; 界面换热系数; 玻璃润滑剂

中图分类号: TG376.2; TG146.4⁺14

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2019)05-1579-05

纯锆在低温时为密排六方结构, 高温时为体心立方结构; 其同素异性转变温度为 862 °C^[1]。锆合金由于具有较低的中子吸收截面, 优异的核性能, 良好的抗高温和蒸汽腐蚀能力和力学性能而被广泛用作核动力反应堆燃料元件包壳及堆芯结构部件材料^[2-4]。锆的制备过程较为苛刻, 在冶炼及加工过程中通常难免会引入许多诸如 Si、N、C、Ti、Al 等有害元素, 对锆的使用性能特别是耐腐蚀性能造成很大的危害。因此, 通常在锆当中加入 Sn、Nb、Fe 等元素来改善锆的耐腐蚀性能和力学性能^[5]。目前, 锆合金发展形成了 3 大系列: Zr-Nb, Zr-Sn 和 Zr-Sn-Nb, 其中 Zr-Sn 系中的 Zr-4 合金、Zr-Nb 合金中的 M5 合金和 Zr-Sn-Nb 系中的 ZIRLO 和 E635 合金已经大量应用在核电工业中。

锆和锆合金可制成管材、板材和棒材, 其中以管材为主要产品。管材主要采用热挤压加轧制获得。锆和锆合金的挤压工艺特性兼有色金属和黑色金属的挤压工艺特性^[6], 对挤压比、工模具、加热温度、润滑工艺等都有严格的要求^[7,8]。例如, 锆合金润滑剂的选择一方面要求其具有良好的润滑效果, 从而达到降低挤压力、延长工模具使用寿命、提高制品质量的目的; 另一方面, 由于坯料和模具钢的初始温差较大 (200~300 °C), 因此要求润滑剂具有良好的隔热作用, 以减

少挤压时锆合金的表面温降和模具钢的表面温升。

目前, 国内生产型材 (尤其是核级锆材) 的尺寸公差控制、表面质量、性能稳定性、生产成本等方面与国外相比存在较大差距。通过模拟仿真技术对锆合金挤压成形过程金属变形体内的应力场、应变场、温度场、速度场等物理量的分析, 优化挤压工艺及工模具结构, 对于缩短锆材研发周期、降低研发成本、提升锆合金挤压制品的整体加工水平具有重要意义。

实现挤压成形精确模拟仿真的前提是确定可靠的边界条件, 界面换热系数是锆合金挤压工艺模拟的重要边界条件参数之一, 直接影响温度场、应力场、应变场等计算的准确性。目前的相关研究多数是确定了坯料与模具界面在某个温度下的换热系数^[9], 实际上换热系数不是一个定值, 而是随界面温度的变化而改变, 挤压模拟时若将换热系数设为定值, 往往导致较大的计算误差。因此有必要确定换热系数与模具/坯料温度之间数学关系。

本实验以 Zr-4 合金玻璃润滑挤压为模拟对象, 研究界面玻璃润滑和无润滑状态下的 Zr-4 合金和模具钢之间的传热过程, 测量接触界面温度随接触时间的变化曲线, 通过换热系数计算, 得到 Zr-4 合金与模具钢的界面换热系数值, 建立界面换热系数随 Zr-4 合金与

收稿日期: 2018-05-10

基金项目: 国家重点研发计划资助项目 (2017YFB0306200)

作者简介: 倪 嘉, 女, 1993 年生, 硕士, 北京科技大学新材料技术研究院, 北京 100083, 电话: 010-62332253, E-mail: nijia4131@163.com

模具钢界面温度差值 ΔT_c 和 Zr-4 合金初始温度 $T_{初}$ 变化的对应函数式, 通过对比数值模拟结果和实验结果对上述函数式进行验证。

1 实验

实验材料为 Zr-4 合金与 H13 模具钢。根据锆合金挤压工艺特点, 设计界面换热试验模拟装置如图 1 所示, 模具钢和 Zr-4 合金棒的直径均为 $\Phi 20$ mm, 从距离模具钢和锆合金棒端面 1 mm 处打一直径 $\Phi 1$ mm 深度为 10 mm 的盲孔, 再在距离第 1 个孔向下 5 mm 处打一个相同的孔, 图中 1、2、3、4 分别代表 4 个温度采集点的位置。为了减小响应时间, 选择露端式 K 型热电偶作为温度传感器。热电偶接在多通道信号处理模块上, 温度数据由多通道数据采集卡 (DAQ) 进行采集。

锆合金与模具钢之间的粉末状玻璃润滑剂的松装厚度为 0.3 mm, 润滑剂由北京天立创科技有限公司提供, 其主要成分如表 1 所示, 软化点约为 580 °C。

采用电阻加热炉分别将 Zr-4 合金棒加热到 600~750 °C, H13 模具钢棒加热到 450~480 °C, 使模具钢棒端面与润滑剂接触, 同时采集温度变化数据。

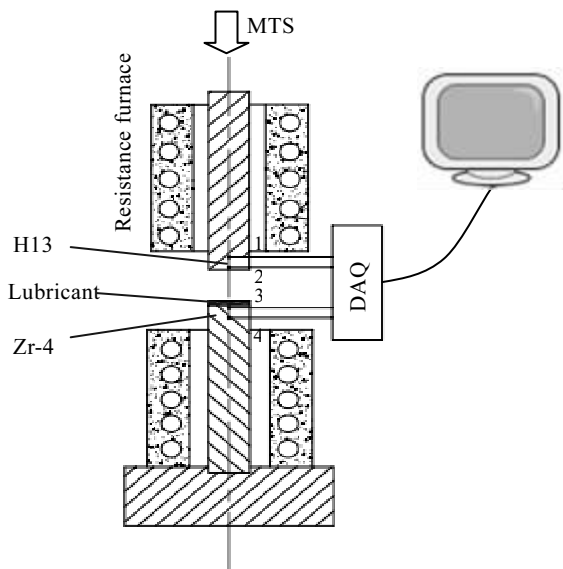


图 1 界面换热实验装置示意图

Fig.1 Schematic illustration of interface heat transfer experimental equipment

表 1 玻璃润滑剂的化学成分

Table 1 Composition of glass lubricant (wt%)

SiO ₂	Al ₂ O ₃	B ₂ O ₃	Na ₂ O	CaO	MgO	BaO	ZnO	LiO
40	3	25	15	5	3	5	2	1

考虑到玻璃润滑剂的厚度对界面传热系数的影响也很大, 厚度越大, 界面传热系数越小, 因此, 通过控制 MTS 材料试验机移动距离, 保证 Zr-4 合金棒与模具钢接触时玻璃润滑剂厚度均在 0.1 mm 左右。根据 Zr-4 合金的热膨胀系数 ($5.8 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ [10]) 计算不同加热温度时的上升距离。

基于一维稳态导热方程, 换热系数的理论计算公式为:

$$h_c = Q / (\Delta T_c A) \tag{1}$$

式中, h_c 为传热系数, $\text{W}/(\text{m}^2 \cdot ^\circ\text{C})$; Q 为热流量, W ; ΔT_c 为接触界面两端的温差, $^\circ\text{C}$; A 为接触面面积, m^2 。

根据式 (1), 只要测得固体界面两端的温差 ΔT_c 与通过试样的热流量 Q , 即可求得界面换热系数。 ΔT_c 即为自行设计的实验装置中位置 3 与位置 4 的温度差, 热流量可根据傅里叶定律 [11] 计算得到:

$$Q = \lambda A k \tag{2}$$

其中, λ 为试样的热传导系数; k 为温度 T 随着传热距离 X 变化 (温度梯度, dT/dX) 的斜率, 本实验利用测温点 3, 4 的温度数据。

将式 (2) 代入到式 (1) 中即可得到换热系数的最终表达式:

$$h_c = (\lambda k) / \Delta T_c \tag{3}$$

将计算得到的换热系数值、锆合金和模具钢的对应温度值代入 Deform 模拟软件中进行传热模拟计算, 得到温度场数据, 将模拟的温度场数据和相应条件下的实验实测温度数据进行对比, 从而来验证换热系数与锆合金/模具钢温度对应关系式的准确性。

2 结果及讨论

2.1 Zr-4 合金与 H13 模具钢的界面传热特征

将 Zr-4 合金加热到 600~750 °C, H13 模具钢加热到 450~480 °C, 在锆合金棒端部涂覆玻璃润滑剂时进行了多组实验, 同时为了对比无润滑条件下的传热行为, 增加一组 Zr-4 合金与模具钢直接接触的换热实验。Zr-4 合金与 H13 模具钢接触时的温度-时间变化特征如图 2 所示, 其中曲线 1~4 分别代表图 1 中换热装置 1~4 的位置点的温度变化值, 位置点 2、3 所测温度为接触面的温度, 传热开始点即为曲线斜率的改变点, 结束点大概在曲线两条切线的交点处。

图 2b 为在无润滑剂条件下 Zr-4 合金与 H13 模具钢的界面温度随接触时间的变化曲线 (初始温度条件与图 2a 基本相同), 可以看出其界面温度达到稳定的时间下降到了 7.7 s 左右, 与图 2a 相比时间缩短了约 1/2。

这是因为在无润滑条件下两界面被空气所填充, 而在有润滑的条件下, 随着温度的升高, 玻璃软化熔

融后, 与玻璃接触面上的微小间隙被熔融的玻璃所填充, 导致接触面上的热阻大大减小, 从而使界面传热系数大大增加。

图 2 表明, 玻璃润滑剂可有效减缓 Zr-4 合金与 H13 钢的界面传热。H13 (4Cr5MoSiV1) 模具钢的回火温度通常为 560~600 °C, 超过回火温度使用时模具钢的强度将显著下降, 在挤压力的作用下容易导致模具孔变形。而锆合金挤压坯料加热温度要高于模具钢的回火温度, 必须通过缩短挤压时间或减小坯料与模具的传热等手段确保挤压过程中模具钢不过热, 因此玻璃润滑剂对界面传热的减缓, 有利于延长锆合金挤压模具的使用寿命。

2.2 Zr-4 合金与 H13 模具钢的界面换热系数的确定

根据图 2 的界面温度-传热时间数据, 通过传热学公式 (1) 和 (2) 计算了 Zr-4 合金和 H13 模具钢的界面换热系数, 将界面换热系数随着传热进行程度的变化以及接触面处 Zr-4 合金和 H13 模具钢的温度-时间变化汇总到一个曲线图上, 如图 3 所示 (图中温度曲线对应的是左边的纵坐标, 换热系数对应的是图中右边的纵坐标)。

由图 3a 可以看出, Zr-4 的表面温度为 700 °C 左右, H13 的温度为 450 °C 左右时, 在有润滑剂条件下随着传热过程的进行, 界面换热系数逐渐增大, 从 226 W/(m²·°C) 左右增加到约 2166 W/(m²·°C); 如图 3b, 在没有润滑剂时, 换热系数从 250 W/(m²·°C) 左右增加到大约 2700 W/(m²·°C)。

从传热学公式 (3) 来看, 换热系数 h_c 的大小与其中的 λ 、 ΔT_c 和 k 有关, 而 λ 在该温度范围内变化较小可设为定值, ΔT_c 和 k 为变量。由图 3 可知, 有润滑时, ΔT_c 从开始 220 °C 到传热达到稳定状态时减小到 95 °C; 斜率 k 由 2.50 °C/mm 变化到 9.01 °C/mm, 即 $k/\Delta T_c$ 逐渐增大, 因此换热系数值 $h_c=(\lambda k)/\Delta T_c$ 随传热时间的延长而增大; 在没有润滑的情况下, ΔT_c 从开始 214 °C 到传热达到稳定状态时减小到 100 °C, 斜率 k 由 2.43 °C/mm 变化到 10.66 °C/mm, k 值变化幅度大, ΔT_c 减少幅度较小, 因此其换热系数较有润滑时稍大。

h_c 的大小与 ΔT_c 有关, Zr-4 合金在不同初始温度 $T_{初}$ (600~750 °C) 时的传热系数随两界面温度差值 ΔT_c 的变化曲线 ($h_c-\Delta T_c$ 曲线) 如图 4 所示。由图 4 可以看到, 界面传热系数 h_c 随 ΔT_c 的降低而增大, 且 $h_c-\Delta T_c$

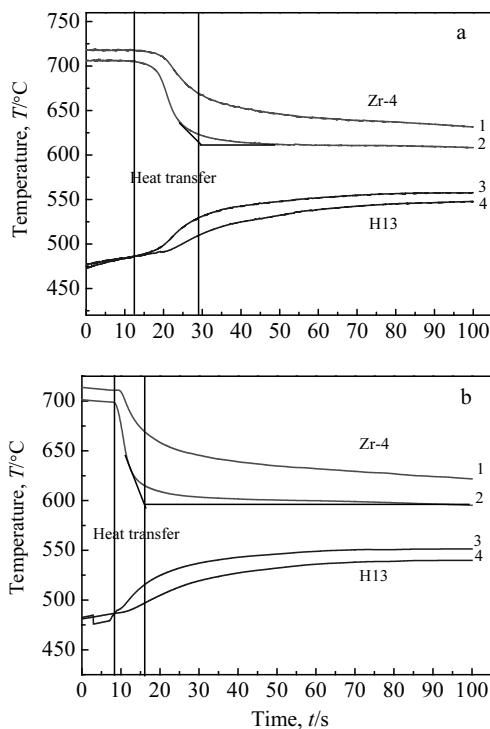


图 2 锆合金与模具钢的采集点温度变化曲线
Fig.2 Measured temperature changes of the zirconium alloy and the die steel with contact time: (a) with lubricant and (b) without lubricant

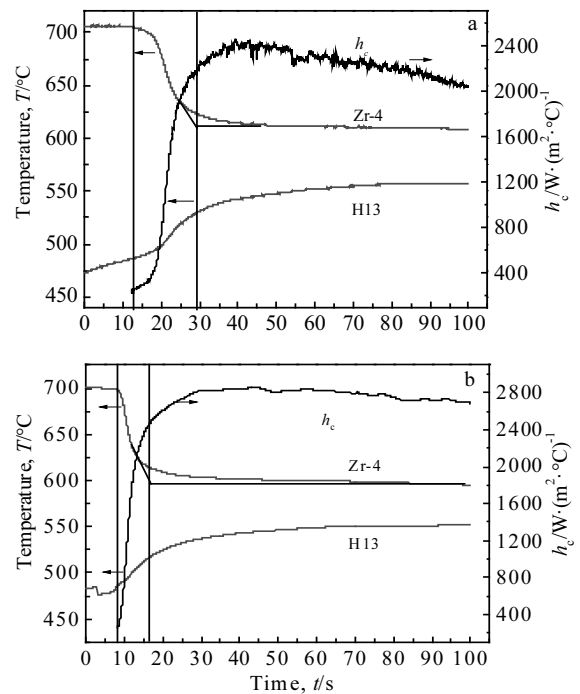


图 3 锆合金与模具钢的接触面温度变化与换热系数值
Fig.3 Temperature and h_c changes of contact surface between the Zr-4 alloy and the H13 steel with contact time: (a) with lubricant and (b) without lubricant

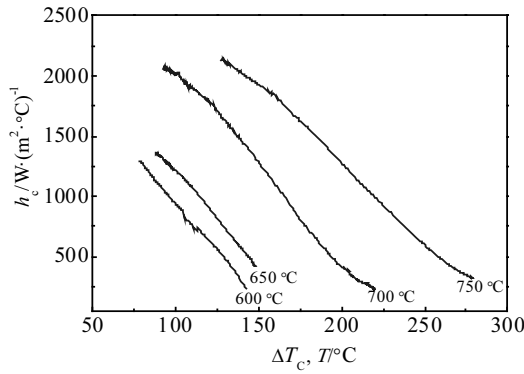


图 4 不同初始温度下 Zr-4 合金冷却过程的 $h_c-\Delta T_c$ 曲线

Fig.4 $h_c-\Delta T_c$ curves of Zr-4 alloy during cooling at different initial temperatures

曲线与 Zr-4 合金初始温度 $T_{初}$ 有关, 当初始温度 $T_{初}$ 不同时, 即使 Zr-4 合金与模具钢在冷却过程中达到相同的界面温差, 其传热系数也不相同。

对图 4 数据采用 Matlab 软件进行拟合, 可得到传热系数与两界面温度差值及初始温度的关系:

$$h_c = -15.0\Delta T_c + 0.04979 T_{初}^2 - 55.35T_{初} + 17860 \quad (4)$$

其中, h_c 为传热系数, $W/(m^2 \cdot ^\circ C)$; ΔT_c 为接触界面两端的温差, $^\circ C$; $T_{初}$ 为 Zr-4 合金初始温度。

3 Zr-4 锆合金与 H13 模具钢的界面换热系数的验证

塑性加工工程的有限元模拟技术已日趋成熟, 决定模拟精度的关键之一是获得准确的塑性本构关系、换热边界条件、摩擦边界条件等。

为了验证本研究所求随温度变化的换热系数的准确性, 再进行一组起始温度与之前不同的有润滑剂的实验, 实验将模具钢的初始温度设为 485 $^\circ C$, Zr-4 合金的初始温度设为 676 $^\circ C$, 将上述温度作为有限元模拟初始条件, 换热系数根据式 (4) 求得。

采用 Deform 软件对 Zr-4 合金与 H13 模具钢的热交换行为进行数值模拟。其模拟界面传热模型如图 5 所示, 为了便于分析只取最前端露在空气中的部分进行研究, 模拟中的传热过程二维平面图如图 6 所示。图 6a~6c 为 H13 模具钢与 Zr-4 合金的温度变化过程 (5~15 s, 间隔 5 s), 当传热进行到 5 s 时 (图 6a), 从图中可以看出模具钢表面温度由 485 $^\circ C$ 上升到 493 $^\circ C$ 左右, 锆合金表面的温度由开始的 676 $^\circ C$ 减小到 651 $^\circ C$ 左右, 10 s 时 (图 6b) 模具钢表面温度上升到 507 $^\circ C$ 左右, 锆合金表面温度下降到 610 $^\circ C$ 左右, 而当时间延长至 15 s 时, 模具钢的温度稍大于 507 $^\circ C$, 锆合金的温度为 594 $^\circ C$ 左右。

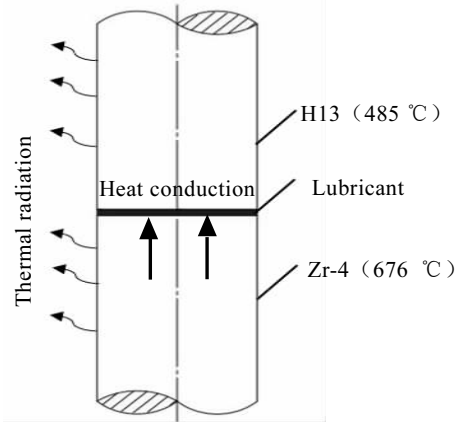


图 5 Zr-4 合金与 H13 钢的模拟界面传热模型

Fig.5 Simulation model of interface heat transfer between Zr-4 alloy and H13 steel

将上述模拟得到的界面温度-时间曲线与实验得到的界面温度-时间曲线总结到一个坐标系中, 如图 7 所示, 其中的模拟数据选择的是图 6 中棒坯的心部温度。从图 7 可以看出, 模具钢的模拟与实验值吻合较好, 而对于 Zr-4 合金, 随实验时间的延长模拟与实验值的偏差逐渐增大, 但总体偏差程度较小, 在 15 s 时的最大偏差为 29 $^\circ C$, 误差约为 4.5%, 说明实验过程中的界面换热行为与模拟过程基本是一致的, 因此, 采用本实验确定的换热系数随温度变化的关系式 (式 (4)) 是合理的, 对于锆合金玻璃润滑挤压成形的精确模拟仿真具有参考价值。

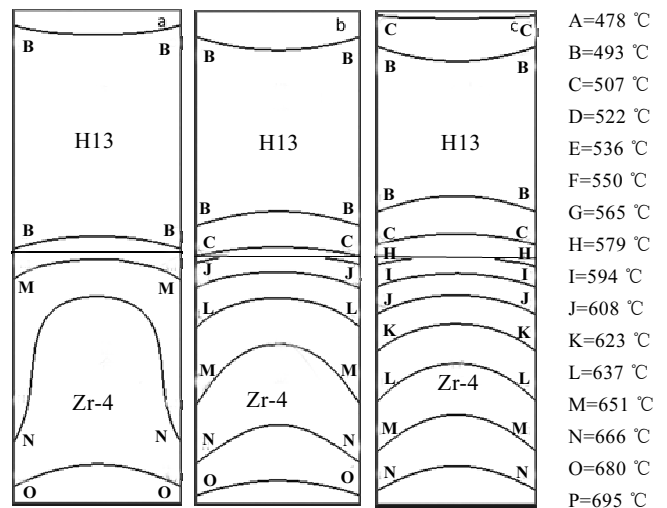


图 6 H13 模具钢与 Zr-4 锆合金的界面模拟传热温度场

Fig.6 Simulated temperature distribution between the H13 die steel and the Zr-4 alloy: (a) 5 s, (b) 10 s, and (c) 15 s

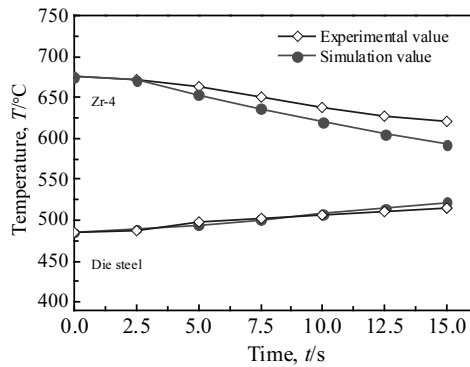


图7 Zr-4合金与模具钢2、3采集点温度变化模拟值与实验值的对比

Fig.7 Comparison of simulated and experimental values of temperature change between collecting points of Zr-4 alloy and die steel 2,3

4 结论

1) 玻璃润滑剂可有效减缓 Zr-4 合金与 H13 钢的界面传热。当 Zr-4 合金和 H13 钢的初始表面温度分别为 700 和 470 °C 时, 有玻璃润滑剂时, Zr 合金表面温度达到稳定的时间约为 16.3 s, 无润滑剂时为 7.7 s, 时间缩短了约 1/2; 有润滑剂时界面换热系数随实验时间的延长由 226 W/(m²·°C) 增大到 2166 W/(m²·°C), 无润滑剂时由 250 W/(m²·°C) 增大到 2700 W/(m²·°C)。

2) 获得了 Zr-4 合金与 H13 模具钢温度变化与换热系数变化的对应关系图及其对应的函数关系式:

$$h_c = -15.0\Delta T_c + 0.04979 T_{初}^2 - 55.35T_{初} + 17860$$

3) 采用本实验确定的换热系数随温度变化的关系式进行热交换模拟时具有较高的模拟精度, 模拟与实验结果的最大误差约为 4.5%。

Interfacial Heat Transfer Behavior Between Zr-4 Alloy and H13 Die Steel

Ni Jia^{1,2}, Wang Lian³, Zhang Zhihao^{1,2}, Xie Jianxin^{1,2}

(1. Institute for Advanced Materials and Technology, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

(2. Key Laboratory for Advanced Materials Processing (MOE), Beijing 100083, China)

(3. State Nuclear Bao Ti Zirconium Industry Company, Baoji 721013, China)

Abstract: The contact temperature-time curves between Zr-4 alloy and H13 die steel with glass lubrication and without glass lubrication were measured and the characteristics of the interface heat transfer were analyzed. The corresponding empirical formula between the interfacial heat transfer coefficient and the temperatures of both the Zr-4 alloy and die steel were established. The results show that glass lubricant can reduce the interfacial heat transfer between the Zr-4 alloy and the die steel effectively. When the initial temperatures of the Zr-4 alloy and the die steel are 700 and 470 °C, respectively, the temperature of the zirconium alloy surface tends to be stable at time of about 16.3 s and the IHTC (interfacial heat transfer coefficient) is increased from 226 W/(m²·°C) to 2166 W/(m²·°C) during this time under the condition of glass lubrication, while the temperature of the zirconium alloy surface tends to be stable at time of about 7.7 s and the IHTC is increased from 250 W/(m²·°C) to 2700 W/(m²·°C) during this time without glass lubrication. The empirical formula of IHTC obtained in this paper has such high accuracy that the maximum error between the simulated and experimental results is about 4.7%.

Key words: Zr-4 alloy; die steel; interfacial heat transfer coefficient; glass lubrication

Corresponding author: Zhang Zhihao, Ph. D., Professor, Institute for Advanced Materials and Technology, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, P. R. China, Tel: 0086-10-62332253, E-mail: ntzzh2279@163.com

参考文献 References

- [1] Peng Qian(彭倩), Shen Baoluo(沈保罗). *Chinese Journal of Rare Materials*(稀有金属)[J], 2005, 29(6): 903
- [2] Wang Pengfei(王鹏飞), Zhao Wenjin(赵文金), Chen Le(陈乐) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2015, 44(5): 1150
- [3] Wang Ruining(王蕊宁), Xi Zhengping(奚正平), Zhao Yongqing(赵永庆) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2007, 36(5): 808
- [4] Fan Xuanhua(范宣华), Cai Lixun(蔡力勋), Hu Shao(胡绍) et al. *Journal of materials engineering*(材料工程)[J], 2005(1): 37
- [5] Wang Xufeng(王旭峰), Li Zhongkui(李中奎), Zhou Jun(周军) et al. *Hot Working Technology*(热加工工艺)[J], 2012, 41(2): 71
- [6] Zhang Libo(张立波), Quan Xiaohui(权晓惠), Jing Yunhai(荆云海) et al. *Heavy Machinery*(重型机械)[J], 2015(6): 11
- [7] Wang Lixia(王丽霞), Zhang Xiyan(张喜燕), Xue Xiangyi(薛祥义) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2013, 42(1): 153
- [8] Jing Yunhai(荆云海), Zhang Mingxiang(张明祥), Wang Wei(王伟) et al. *Heavy Machinery*(重型机械)[J], 2015(2): 35
- [9] Rosochowska M, Balendra R, Chodnikiewicz K. *Journal of Materials Processing Technology*[J], 2003, 135(2-3): 204
- [10] Zhou Huidong(周汇东). *Water-cooled Power Reactor Fuel Cladding Material: Zirconium Alloy*(水冷动力堆燃料包壳材料: 锆合金)[M]. Beijing: Atomic Energy Press, 1979
- [11] Yang Shiming(杨世铭), Tao Wenquan(陶文铨). *Heat Transfer*(传热学)[M]. Beijing: Higher Education Press, 2006