

# Ni 中间层厚度对 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头微观组织和性能的影响

李茜茹, 张帆, 牛士玉, 王颖, 杨振文

(天津大学, 天津市现代连接技术重点实验室, 天津 300350)

**摘要:** 本文系统地研究了不同厚度 Ni 中间层对 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头微观组织、力学性能以及腐蚀性能的影响, 结果表明, 接头的典型界面组织为 Zr-4/ $\beta$ -(Zr, Nb)/Nb/Ni<sub>3</sub>Nb/Ni/316SS。接头的抗剪强度随着 Ni 中间层厚度的增加先上升后下降, 当 Ni 中间层为 30  $\mu\text{m}$  厚时, 接头抗剪强度达到最大值 380 MPa。为明确 Ni 中间层厚度对接头力学性能的作用机制, 本文提取了接头界面的微观组织结构特征, 并使用 Abaqus 模拟了接头界面残余应力分布情况。结合模拟结果对不同接头的力学性能和断裂情况进行对比分析, 发现 Ni 中间层越厚, 缓解残余应力的效果越好, 但过厚的 Ni 中间层由于其良好的延展性会降低接头抗剪强度。最后, 采用全浸腐蚀法研究了接头的耐腐蚀性能, 结果发现接头的腐蚀速率随着 Ni 中间层厚度的减小而降低, 当 Ni 中间层厚度为 10  $\mu\text{m}$  时, 接头的耐腐蚀性能最佳。综上所述, 建议将 Ni 中间层厚度控制在 10  $\mu\text{m}$ -30  $\mu\text{m}$  之间, 以兼顾接头的力学性能和耐腐蚀性能。

**关键词:** Ni 中间层厚度; 有限元模拟; 界面组织; 抗剪强度; 耐腐蚀性能

中图分类号: TG457.1

文献标识码: A

文章编号:

锆的热中子吸收截面小且抗腐蚀性能优异, 因此锆及其合金被广泛应用于核动力水冷反应堆的燃料包壳管、压力管及导向管等结构<sup>[1-6]</sup>。但是, 锆合金价格比较昂贵, 一般只用作堆芯内部的核心材料。与之相比, 不锈钢价格低廉, 且具有良好的成形性能、焊接性能和耐腐蚀性能, 故不锈钢可用作服役环境相对温和的堆芯外部结构材料<sup>[7]</sup>。此外, 核工业用的结构材料需要承受高温、高酸等环境。综上, 实现锆合金与不锈钢异种材料的可靠连接并保证接头具有良好的耐腐蚀性, 对核工业设备的安全运行具有重要意义<sup>[8]</sup>。

目前, 对于锆合金和不锈钢的连接方法包括熔焊<sup>[9]</sup>、钎焊<sup>[10]</sup>和扩散焊<sup>[11]</sup>等。其中, 熔焊由于热输入大易导致锆合金和不锈钢接头中产生粗大的 Zr-Fe-Cr 系和 Zr-Fe-Ni 系金属间化合物, 削弱接头性能<sup>[9]</sup>。钎焊<sup>[10]</sup>和直接扩散焊<sup>[11]</sup>虽然避免了热输入大的问题, 但锆合金与不锈钢接头中仍存在较厚的金属间化合物层, 且伴随大量裂纹, 这是锆合金与不锈钢热物性差异大以及焊后接头残余应力大所致。

基于上述问题, 研究者们发现添加合适的中间层进行扩散连接可以有效缓解锆合金与不锈钢接头的残余应力, 并避免接头生成有害的 Zr-Fe-Cr 系和 Zr-Fe-Ni 系金属间化合物。目前, 已报道的中间层材料包括 Cu<sup>[12]</sup>、Ni<sup>[13]</sup>、Ag/Ti<sup>[14]</sup>、Ta/Ni<sup>[15]</sup>、Nb/Ni<sup>[16]</sup>等。上述中间层中,

Ni 中间层与不锈钢的相容性较好, 可以有效缓解残余应力, 但 Ni 与 Zr 易反应生成一系列金属间化合物, 成为裂纹萌生区, 降低接头性能。因此, 单一中间层无法同时与锆合金和不锈钢具有良好的冶金相容性, 在锆合金与 Ni 之间加入另一种中间层可阻碍 Ni-Zr 金属间化合物的生成。Wang 等<sup>[15]</sup>和 Yang 等<sup>[16]</sup>分别使用 Ta/Ni 和 Nb/Ni 复合中间层进行锆合金与不锈钢的扩散连接, 均阻碍了 Ni-Zr 金属间化合物的生成, 接头中分别生成了 Ni<sub>3</sub>Ta 和 Ni<sub>3</sub>Nb 层, 这两种反应层中未出现裂纹, 接头抗剪强度分别达到 194 MPa 和 380 MPa。与 Ta/Ni 复合中间层相比, 采用 Nb/Ni 复合中间层的锆合金与不锈钢接头抗剪强度更高, 这是由于 Ni<sub>3</sub>Nb 比 Ni<sub>3</sub>Ta 的强度和塑性更好。对于添加 Nb/Ni 复合中间层的 Zr-4 合金与 316SS 扩散连接接头, 剪切断面显示断裂主要沿 Ni<sub>3</sub>Nb 层和 Ni 层交界外延伸, 接头的薄弱环节为 Ni<sub>3</sub>Nb 反应层。因此, 接头的力学性能与 Ni 中间层密切相关, 但目前 Ni 中间层厚度对 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头微观组织和力学性能的影响机制尚不明确。

对于接头力学性能的研究, 多数学者采用有限元分析方法模拟焊后残余应力分布情况, 并结合断面形貌分析接头失效原因。Wei 等人<sup>[17]</sup>模拟了 Cu 与 Ti 直接扩散连接界面的残余应力分布情况, 结果发现残余应力主要集中在界面反应层的交界处, 但作者在模拟过程中忽略

收稿日期:

基金项目: 国家自然科学基金优秀青年项目(52222511); 国家自然科学基金面上项目(52175357)资助

作者简介: 李茜茹, 女, 2000 年生, 硕士, 天津大学材料科学与工程学院, 天津 300350, 电话 022-27405889, E-mail: Liqianru2000@tju.edu.cn



了材料在加热和保温过程的变形,未对接头界面进行轮廓提取,这会导致接头界面的残余应力分布情况与实际情况有差异。因此,建立可近似真实反应焊后接头界面结构的有限元模型是探究中间层厚度对异种材料扩散连接接头性能影响机制的关键。

本文探究了 Ni 中间层厚度对 Zr-4/Nb/Ni/316SS 接头力学性能的影响,通过提取不同厚度 Ni 中间层作用下接头的界面微观形貌,对界面残余应力分布情况进行有限元模拟,从而建立不同 Ni 中间层厚度下接头界面组织结构-残余应力-力学性能的联系。此外,为明确核工业用结构材料的应用潜能,Zr-4/Nb/Ni/316SS 接头的耐腐蚀行为被研究。

## 1 实验

### 1.1 母材及扩散连接工艺

本研究使用的母材分别为 Zr-4 合金和 316SS,母材具体的化学成分见表 1。Zr-4 合金中主要包含 Zr 元素,含有少量的 Fe 和 Sn 元素。316SS 中的主要元素为 Fe、Cr、Ni 元素。室温下 Zr-4 合金的主要物相为  $\alpha$ -Zr,316SS 为包括(Fe, Ni)和(Fe, Cr)两种固溶体相的典型奥氏体不锈钢<sup>[18]</sup>,如图 1 所示。实验开展前采用线切割机先将 Zr-4 合金和 316SS 分别切成 5 mm × 5 mm × 5 mm 和 12 mm × 10 mm × 3 mm 的小块。Nb 和 Ni 中间层加工成 6 mm × 6 mm 的小片,其中 Nb 中间层的厚度均为 20  $\mu$ m, Ni 中间层的厚度分别为 10  $\mu$ m、30  $\mu$ m 和 50  $\mu$ m。用 SiC 砂纸将块状母材表面打磨至 7000#,中间层箔片经 2000#砂纸打磨去除表面氧化膜。将处理好的母材和中间层箔片置于干燥的烧杯中并用丙酮超声冲洗 10 min,后经吹风机干燥放置一边备用。按照 Zr-4/Nb/Ni/316SS 的顺序依次进行装配,如图 2a 所示。将装配好的试样放置于高温真空炉内,通过石墨压头对其施加 10 MPa 的压力。当炉内真空度达到  $1.0 \times 10^{-3}$  Pa 时,启动加热系统(10 $^{\circ}$ C/min 下升温至 820 $^{\circ}$ C,保温 60 min 后,以 5 $^{\circ}$ C/min 的速度降温至 400 $^{\circ}$ C,最后随炉温自然冷却至室温)。

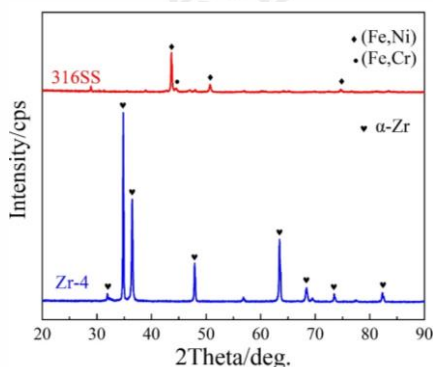


图 1 Zr-4 和 316SS 的 XRD 图谱

Fig.1 XRD pattern of Zr-4 and 316SS

表 1 Zr-4 合金和 316SS 的化学成分(wt. %)

Table 1 Nominal composition of Zr-4 alloy and 316SS (wt. %)

| Alloy | Zr   | Fe   | Cr          | Ni          | Sn   | C     |
|-------|------|------|-------------|-------------|------|-------|
| Zr-4  | Bal. | 0.20 | 0.10        | <0.05       | 1.50 | 0.02  |
| 316SS | —    | Bal. | 16.00-18.00 | 10.00-14.00 | —    | ≤0.03 |

### 1.2 组织表征及性能测试

对扩散连接后的试样用线切割切开后,对连接界面暴露面进行打磨并抛光至无划痕。采用腐蚀液(10%氢氟酸,45%浓硝酸和 45%去离子水)对抛光后的表面进行腐蚀,作为微观组织分析试样。利用热场发射扫描电镜(Scanning electron microscope, SEM, JSM-7800F)观察扩散连接接头的反应相组成和断口形貌,配备的能谱仪(Energy dispersive spectrometer, EDS)可以分析微观组织的元素含量和元素分布情况。

本文采用抗剪强度评价接头的力学性能,试验设备为万能试验机(MTS E45.106),试验时先将试样放置于定制的卡具中,载荷加载速率为 0.2 mm/min,其中接头与卡具的装配图如图 2a 所示,接头强度由式(1)计算。每个参数至少 3 个平行试样,取平均强度作为接头的抗剪强度。

$$\tau = \frac{F}{S} \quad (1)$$

式中  $F$  和  $S$  分别表示接头发生断裂时所承受的最大载荷(N)和接头连接面积( $\text{mm}^2$ )。

本文对接头腐蚀性能的研究采用全浸实验的方式,该实验使用的腐蚀介质为 6 mol/L 的浓硝酸。将焊后的扩散连接接头试样垂直于焊接面切开,按照制备金相的方法打磨抛光至无划痕,经酒精清洗干净并吹干后采用分析天平称量腐蚀前的重量,随后在室温下的硝酸溶液中对处理好的试样进行浸泡腐蚀试验。其中,每次浸泡试验前均需在 100 mL 烧杯中倒入 30 mL 的浓硝酸,保证试样可完全浸没于浓硝酸中。为了防止浓硝酸的挥发,试验前需用保鲜膜将烧杯口密封。每隔 24 h 将浸泡的试样取出,依次用去离子水,丙酮和酒精清洗干净并且烘干,称量腐蚀后的重量(称量后更换新的腐蚀液继续浸泡腐蚀),并用公式(2)计算其腐蚀速率。

$$V_t = \frac{m_0 - m_t}{m_0 \cdot t} \quad (2)$$

式中  $V_t$  为腐蚀速率(%/h),  $m_0$  为接头原始重量(g),  $m_t$  为接头腐蚀后重量(g),  $t$  为腐蚀时间(h)。

### 1.3 有限元模拟

为研究接头残余应力的分布规律,使用法国达索

SIMULIA 公司开发的 Abaqus6.14 软件对接头残余应力进行有限元模拟。借助美国 SolidWorks 公司开发的 solidworks2021 软件，从扫描电镜图像中提取接头的界面轮廓，作为可识别的草图文件，用于建立有限元仿真模型。根据对比度差异从 SEM 图像中区分并提取 Zr-4、

316SS 及其界面相，从而在建立的有限元模型中赋予不同特征的网格和相应的物理性质。有限元模型的轮廓提取和网格划分过程如图 2b 所示，用于有限元模拟的物性参数如表 2 所示。

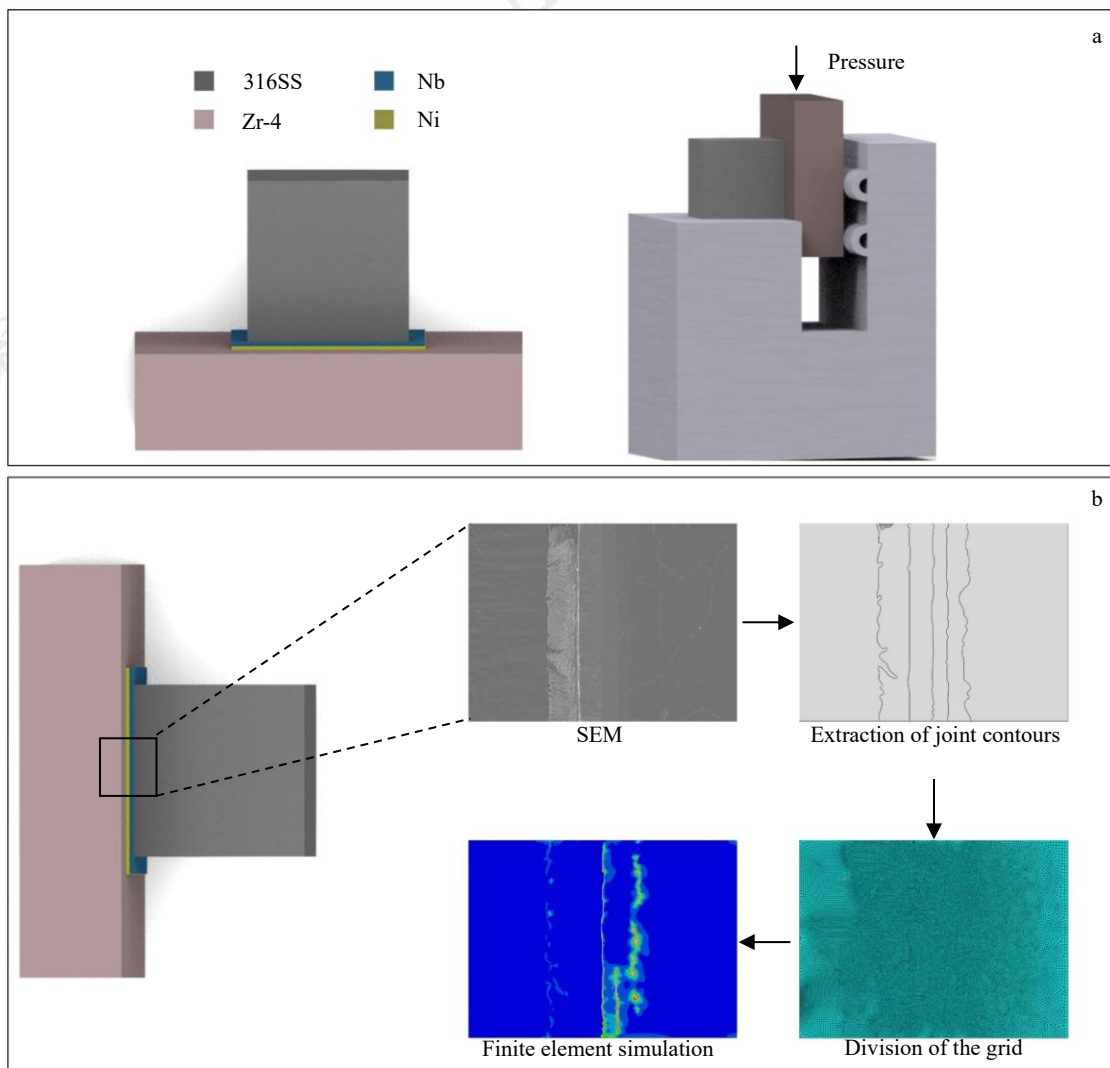


图 2 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头装配图及模拟过程

Fig.2 Zr-4/Nb/Ni/316SS diffusion joint assembly diagram and simulation process:

(a) hear test, (b) Process of finite element simulation

表 2 有限元模拟相关相的物性参数

Table 2 Correlated phase physical parameters used for finite element simulation<sup>[19-23]</sup>

| Material | Temperature<br>℃ | Density<br>(kg·m <sup>-3</sup> ) | Elasticity modulus<br>GPa | Thermal expansivity<br>(1×10 <sup>-6</sup> ·K <sup>-1</sup> ) | Poisson ratio | Specific heat<br>(J·kg <sup>-1</sup> ·K <sup>-1</sup> ) | Pyroconductivity<br>(W·M <sup>-1</sup> ·K <sup>-1</sup> ) |
|----------|------------------|----------------------------------|---------------------------|---|---------------|---|---|
| Zr-4     | 20               | 6490                             | 70                        | 0   | 0.33          | 282   | 13.6  |
|          | 200              |                                  | 67                        | 1.8   | 0.36          | 303   | 14.7  |

|                    |     |      |     |      |      |     |       |
|--------------------|-----|------|-----|------|------|-----|-------|
|                    | 400 |      | 60  | 2.9  | 0.41 | 320 | 16.4  |
|                    | 600 |      | 53  | 4    | 0.44 | 341 | 18.7  |
|                    | 800 |      | 45  | 5.2  | 0.47 | 360 | 21.8  |
|                    | 10  | 7966 | 194 | 15.4 | 0.29 | 502 | 14.12 |
|                    | 200 |      | 185 | 16.2 | 0.29 | 514 | 16.69 |
| 316SS              | 400 |      | 173 | 17.4 | 0.29 | 638 | 19.54 |
|                    | 600 |      | 155 | 18.1 | 0.29 | 562 | 22.38 |
|                    | 800 |      | 131 | 18.7 | 0.29 | 587 | 25.23 |
|                    | 20  | 8570 | 122 | 8.5  | 0.33 |     |       |
| Nb                 | 200 |      | 119 | 9.7  |      |     |       |
|                    | 600 |      | 95  | 11   |      |     |       |
|                    | 800 |      | 76  | 12.3 |      |     |       |
|                    | 20  | 8900 | 208 | 15.5 | 0.31 |     |       |
| Ni                 | 327 |      | 190 | 16.1 |      |     |       |
|                    | 527 |      | 174 | 16.7 |      |     |       |
|                    | 727 |      | 158 | 17.8 |      |     |       |
|                    | 127 |      | 120 | 25   |      |     |       |
| $\beta$ -(Zr, Nb)  | 427 |      | 105 | 27   |      |     |       |
|                    | 827 |      | 90  | 31   |      |     |       |
| Ni <sub>3</sub> Nb |     | 8900 |     |      | 0.42 | 550 | 85    |

## 2 结果与讨论

### 2.1 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头的典型界面组织

图 3 为连接温度 820℃，保温时间 60 min，压力 10 MPa 下获得的 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头典型界面组织及 EDS 面扫结果，其中 Nb 中间层和 Ni 中间层厚度分别为 20 μm 和 30 μm。结合图 3a 的界面组织图，可以将接头界面组织分为四个区域(I-IV)。由面扫结果可知，区域I主要由 Zr 和 Nb 组成，区域II主要由 Nb 组成，区域III主要由 Nb 和 Ni 组成，区域IV主要由 Ni 组成。对界面各个区域中代表性组织进行了 EDS 能谱测试，结果列于表 3 中。A 点 Zr 元素含量为 89.3 at.%，可以确定其为 Zr-4 基体；区域I主要由白色相组成，B 点标记的白色相中 Zr 元素原子占比大于 Nb，且 Nb 含量较 A 点提高

了 6%，该区域被可被定义为 Zr-Nb 扩散层。根据 Zr-Nb 二元相图可知<sup>[24]</sup>，Nb 在  $\alpha$ -Zr 中的固溶度非常低 (<0.1wt.%)，而  $\beta$ -Zr 和 Nb 之间具有较大的固溶度，可以形成连续固溶体，因此区域I的主要成分为  $\beta$ -(Zr, Nb)固溶体；C 点位置 Nb 占比 89.4 at.%，因此可以推断区域II为剩余的 Nb 中间层；D 点位置的 EDS 结果显示 Nb 含量为 26.6 at.%，Ni 含量为 71.2 at.%，可知 Nb 和 Ni 的化学计量比接近 1: 3，根据 Nb-Ni 二元相图<sup>[24]</sup>，可以推断区域III的主要物相为 Ni<sub>3</sub>Nb，该相为 Nb-Ni 间发生反应形成的金属间化合物；E 点 Ni 素占比为 97.2 at.%，因此推断区域IV主要为剩余的 Ni 中间层；F 点测得的主要元素为 Fe、Cr 和 Ni，依据其各元素占比情况可以判定该区域为 316SS 基体。

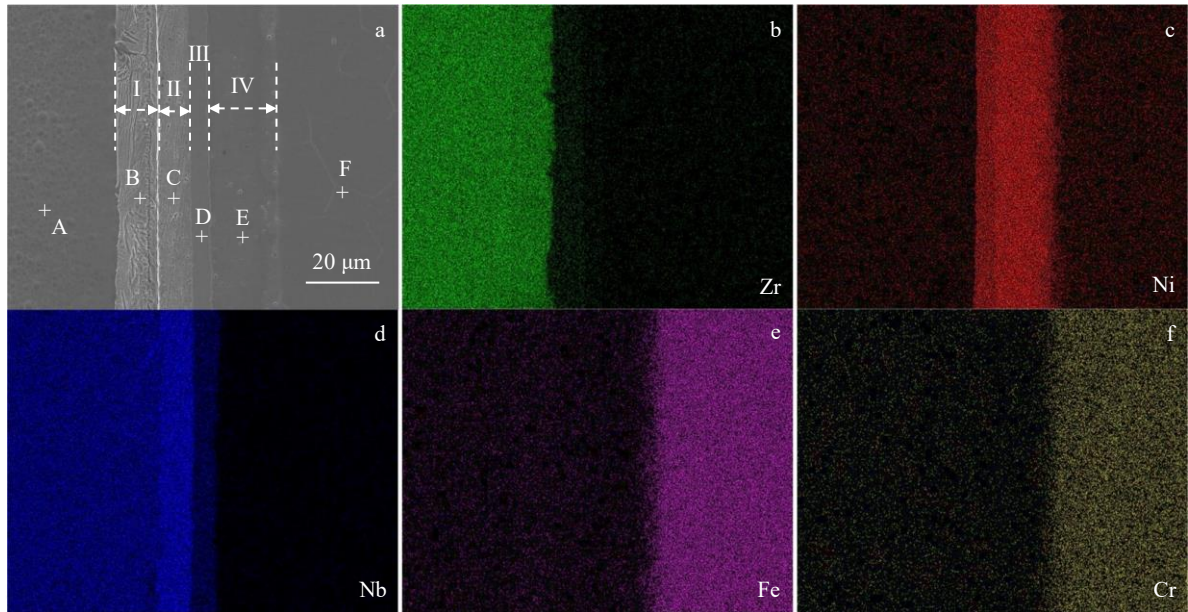


图 3 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头的 EDS 面扫描结果(820℃-60 min-10 MPa)

Fig.3 The corresponding EDS mapping results of Zr-4/Nb/Ni/316SS diffusion joint:

(a) Microstructure of joint interface, (b) Zr, (c) Ni, (d) Nb, (e) Fe, (f) Cr

表 3 图 3a 中各点的 EDS 结果(at.%)

Table 3 The EDS results of each point in Figure 3a(at.%)

| Point | Zr   | Nb   | Ni   | Fe   | Cr   | Possible phase    |
|-------|------|------|------|------|------|-------------------|
| A     | 89.3 | 9.1  | 0.6  | 0.6  | 0.2  | Zr-4              |
| B     | 77.0 | 15.0 | 2.9  | 3.2  | 1.1  | $\beta$ -(Zr, Nb) |
| C     | 3.7  | 89.4 | 4.1  | 1.7  | 0.9  | Nb                |
| D     | 1.3  | 26.6 | 71.2 | 0.5  | 0.4  | $Ni_3Nb$          |
| E     | 0.5  | 0.4  | 97.7 | 0.8  | 0.6  | Ni                |
| F     | 0.3  | 0.1  | 8.9  | 71.6 | 19.2 | 316SS             |

## 2.2 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头力学性能

分别使用 10  $\mu\text{m}$ 、30  $\mu\text{m}$  和 50  $\mu\text{m}$  的 Ni 中间层得到的 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头 (820℃-60 min-10 MPa) 显微组织以及相应的线扫描结果如图 4 所示。随着 Ni 中间层厚度的增加, 接头没有形成新的扩散反应层。结合图 4d-f 的线扫描结果可知, 采用不同厚度 Ni 中间层扩散连接所得到的 Zr-4/Nb/Ni/316SS 接头中  $\beta$ -(Zr, Nb) 反应层厚度均在 16  $\mu\text{m}$  左右,  $Ni_3Nb$  反应层厚度均在 8  $\mu\text{m}$  左右。值得注意的是, 当使用 10  $\mu\text{m}$  厚的 Ni 中间层扩散连接时, 接头中剩余的 Ni 中间层厚度为 3  $\mu\text{m}$ , 而使用 30  $\mu\text{m}$  和 50  $\mu\text{m}$  的 Ni 中间层时, 剩余的 Ni 中间层厚度分别为 22  $\mu\text{m}$  和 53  $\mu\text{m}$ 。

图 5 为不同 Ni 中间层厚度下 Zr-4/Nb/Ni/316SS 接头抗剪强度, 从图中可知随着 Ni 中间层厚度的增加, 接头的抗剪强度先增加后下降, 在 Ni 中间层厚度为 30  $\mu\text{m}$  时达到最大值 380 MPa。结合上述线扫描结果, 初步判断剩余 Ni 中间层厚度是影响接头力学性能的关键, 这是由于在 Zr-4/Nb/Ni/316SS 接头界面中剩余 Ni 中间层厚度是唯一变量, 且 Ni 中间层具有良好的塑性<sup>[6]</sup>, 可以缓解接头的残余应力。为了明确 Ni 中间层厚度对力学性能的作用机制, 本文提取接头界面微观组织结构特征, 使用 Abaqus 模拟接头界面残余应力分布情况。

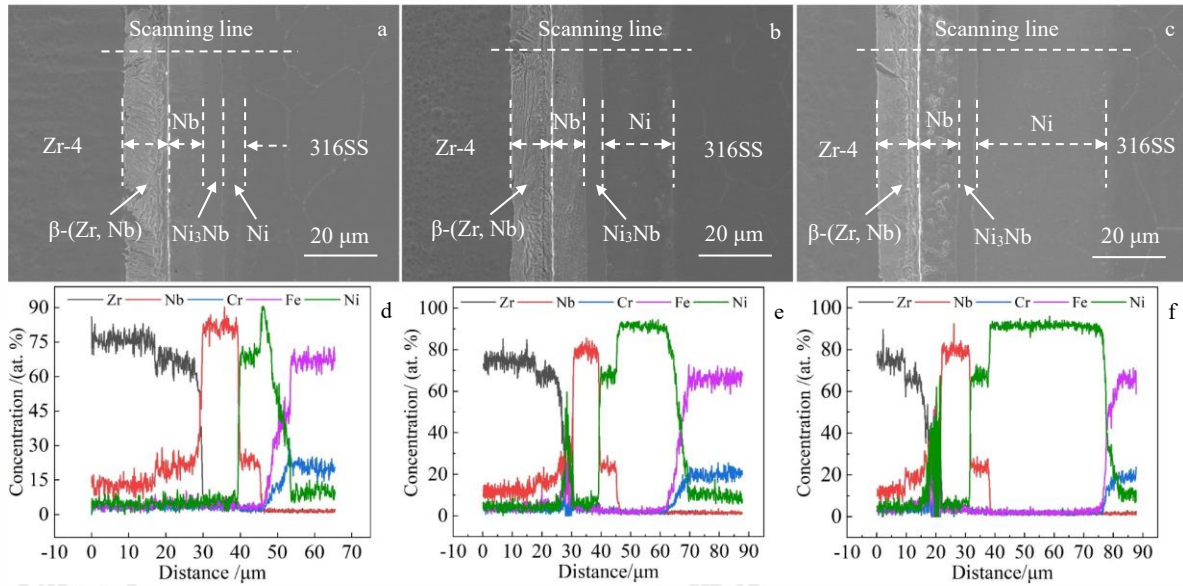


图4 不同Ni中间层厚度下Zr-4/Nb/Ni/316SS扩散连接接头界面组织及相应的EDS线扫描结果(820°C-60 min-10 MPa)

Fig.4 Typical microstructure of Zr-4/Nb/Ni/316SS diffusion joints with different Ni interlayer thicknesses and the corresponding EDS line scan results: (a,d) 10 μm, (b,e) 30 μm, (c,f) 50 μm

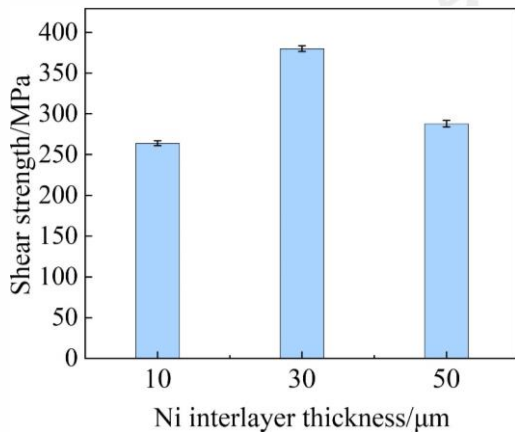


图5 不同Ni中间层厚度下接头的抗剪强度

Fig5 Shear strength of joints with different Ni interlayer thicknesses

### 2.3 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头残余应力模拟结果

在扩散连接的降温过程中, Zr-4、316SS 以及接头界面处各个区域的冷却速度不一致, 且它们的热物性参数不同, 导致母材及界面各区域在扩散连接过程中膨胀和收缩的变形量不一致而产生内应力。本文从扫描电镜图像中提取接头的界面轮廓并将其作为可识别的草图文件, 采用 abaqus6.14 软件建立 Zr-4/Nb/Ni/316SS 接头界面的有限元仿真模型, 分析焊后接头界面的残余应力分布情况。这种提取界面微观形貌来建立有限元模型的方法能

够更清楚的观察接头界面处各个区域的残余应力分布情况, 便于深入分析不同 Ni 中间层厚度对接头性能的影响。由于真空扩散连接实际过程较复杂, 将所有因素都加以考虑非常困难, 因此在模拟过程中假设材料是各向同性均质、不计相变产热及材料内部缺陷等。

图 6a-b 为 10 μm 厚的 Ni 中间层作用下 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头合应力  $\sigma_{max}$  和切应力分量  $\tau_y$  (X 方向的应力) 分布图。从图中可知接头的残余应力主要来源于切应力分量  $\tau_y$ , 结合图 7a 可知, 除 Ni/316SS 和  $\beta$ -(Zr, Nb)/Nb 交界处之外, 其余区域的  $\sigma_{max}$  和  $\tau_y$  值较低且分布均匀, 因此推断剪切时接头的断裂(接头薄弱处)倾向于发生在 Ni、Ni<sub>3</sub>Nb 和 Nb 三个区域。从图 6c-d 和图 7b 中可知, 当 Ni 中间层厚度增加到 30 μm 时,  $\sigma_{max}$  和  $\tau_y$  的分布情况未发生明显变化, 推断剪切时的断裂情况(接头薄弱处)与 10 μm 厚的 Ni 中间层接头一致, 且断口的 Ni 元素含量由于 Ni 薄厚度的增加而有所提高。从图 6e-f 和图 7c 中可知, 将 Ni 中间层厚度从 30 μm 增加到 50 μm 后,  $\sigma_{max}$  和  $\tau_y$  的分布情况依旧未发生变化, 推断剪切时的断裂情况应与 10 μm 和 30 μm 厚的 Ni 中间层接头一致。由于 Ni 中间层厚度的进一步增加, 剪切后断口的 Ni 元素含量将进一步增加。

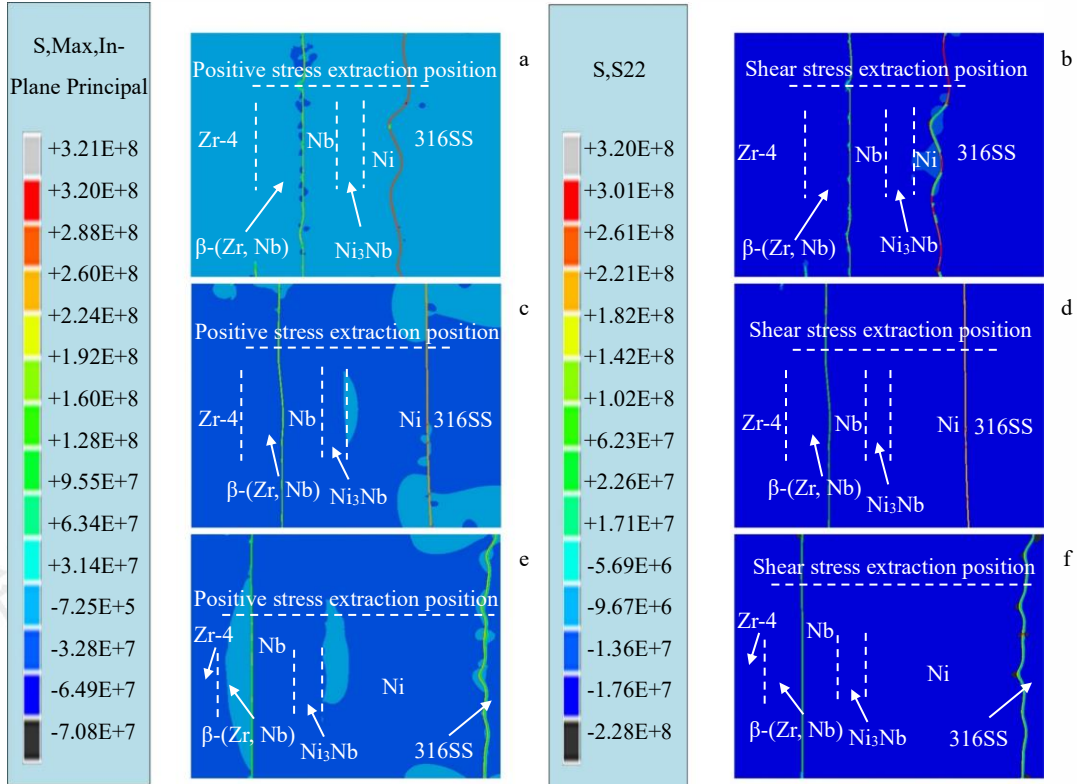


图 6 不同厚度 Ni 中间层作用下的 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头的  $\sigma_{max}$  和  $\tau_y$  分布情况

Fig6 Distribution of  $\sigma_{max}$  and  $\tau_y$  in Zr-4/Nb/Ni/316SS diffusion-jointed joints under the effect of different thicknesses of Ni interlayer:

(a-b) 10  $\mu\text{m}$ , (c-d) 30  $\mu\text{m}$ , (e-f) 50  $\mu\text{m}$

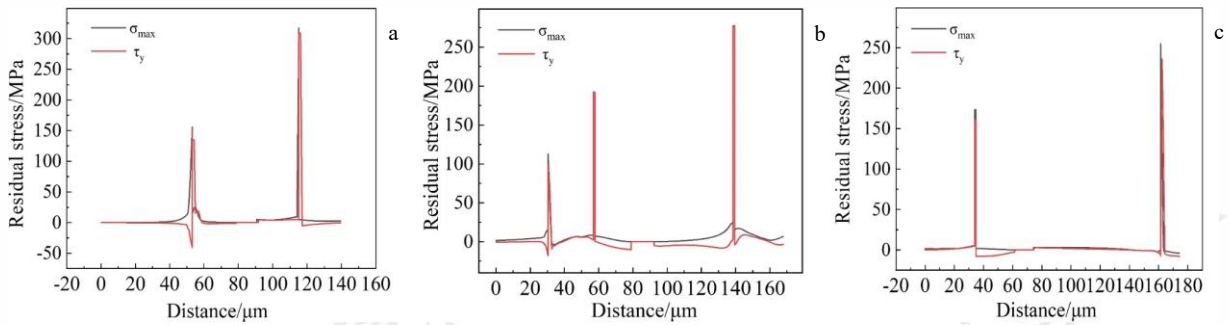


图 7 不同厚度 Ni 中间层作用下接头中  $\sigma_{max}$  和  $\tau_y$  跨界面分布情况 (模拟结果提取线位置见图 6)

Fig7 Distribution of  $\sigma_{max}$  and  $\tau_y$  across the interface joints under the effect of different thicknesses of Ni interlayer: (a) 10  $\mu\text{m}$ , (b) 30  $\mu\text{m}$ , (c) 50  $\mu\text{m}$

图 8 为不同厚度 Ni 中间层作用下接头界面最大残余应力结果。10  $\mu\text{m}$  Ni 中间层厚度下接头的最大  $\sigma_{max}$  与  $\tau_y$  的值分别为 317 MPa 和 309 MPa, 由此可知剩余 Ni 中间层厚度小, 无法有效缓解接头残余应力, 导致接头的抗剪强度仅为 254 MPa。当 Ni 中间层厚度增加到 30  $\mu\text{m}$  时, 接头界面处的最大  $\sigma_{max}$  与  $\tau_y$  得到了有效缓解, 分别下降至 276 MPa 和 277 MPa。该条件下接头抗剪强度由 254 MPa 提升至 380 MPa, 说明 Ni 中间层厚度的增加可有效缓解接头残余应力, 提高接头力学性能。当 Ni 中间

层厚度从 30  $\mu\text{m}$  增加到 50  $\mu\text{m}$  时, 界面处的最大  $\sigma_{max}$  与  $\tau_y$  下降不明显, 分别为 255 MPa 和 235 MPa, 接头强度下降至 288 MPa, 这是由于 Ni 中间层厚度过大会因其良好的延展性导致抗剪强度下降。

为验证模拟结果的真实性, 对剪切后的试样进行了断裂路径和断口分析。图 9a 所示为 Ni 中间层厚度为 30  $\mu\text{m}$  时接头的断裂路径, 从图中可知断裂主要发生在  $\text{Ni}_3\text{Nb}$  反应层。对 316SS 侧断口进行 XRD 分析, 结果如图 9b 所示, 断口表面存在 Ni、 $\text{Ni}_3\text{Nb}$  和 Nb 三种相, 表



明断裂过程中裂纹延伸至剩余 Ni 中间层和 Nb 中间层。

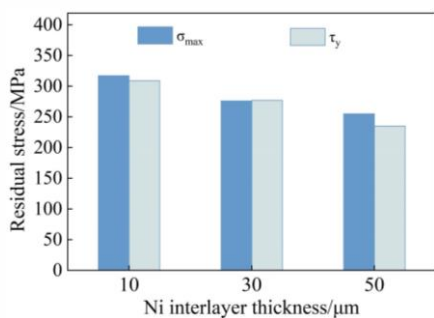


图 8 不同 Ni 中间层厚度作用下接头的最大残余应力

Fig8 Maximum residual stresses of the joints under the effect of 30 μm Ni interlayer thickness

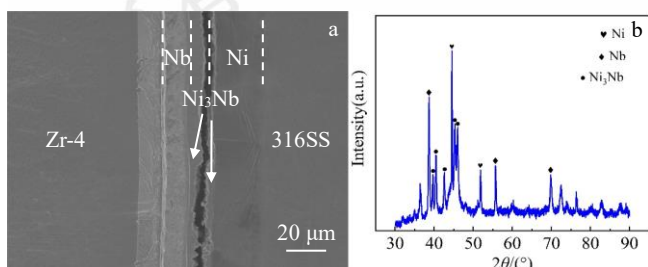


图 9 30 μm 厚 Ni 中间层作用下接头的断裂路径和 XRD 结果

Fig9 Fracture path and XRD result of the joint under the effect of 30 μm Ni interlayer thickness

图 10 为不同 Ni 中间层厚度下 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头的断口形貌图。当 Ni 中间层的厚度为 10 μm 时，断口表面主要存在 Ni<sub>3</sub>Nb 和 Nb，表明裂纹主要沿 Ni<sub>3</sub>Nb 层内部扩展，局部区域扩展至 Nb 一侧。这是由于 Ni 中间层厚度较薄时接头中的残余应力无法被有效缓解，导致了硬度较大的 Ni<sub>3</sub>Nb 处存在较大的应力，因此接头的抗剪强度较低，接头的断口组织呈现脆性断裂的特点。当 Ni 中间层的厚度为 30 μm 时，断口表面可以观察到 Ni<sub>3</sub>Nb 和 Ni，但 Ni 相对 Ni<sub>3</sub>Nb 面积占比要小很多，说明断裂主要沿着 Ni<sub>3</sub>Nb 层扩展，接头的断裂形式以脆性断裂为主，与该接头的残余应力模拟结果和力学性能挂钩。当 Ni 中间层的厚度为 50 μm 时，断口表面组织主要为 Ni<sub>3</sub>Nb 和 Ni，且 Ni 的占比较 10 μm Ni 中间层的接头断口有所提升，说明断裂主要沿着 Ni<sub>3</sub>Nb 层和 Ni 层扩展，因此接头的断裂形式呈现脆性+韧性混合断裂的特点。

虽然 Ni 中间层厚度的增加可以显著降低残余应力，但是接头的力学性能并不完全取决于残余应力的大小，Ni 屈服强度较低，过厚的 Ni 层反而会削弱接头的力学性能，抗剪强度降低。综上所述，接头中的薄弱环

节为硬度较大的 Ni<sub>3</sub>Nb 反应层，不同厚度 Ni 中间层下扩散连接接头的断裂位置主要在 Ni<sub>3</sub>Nb 层。

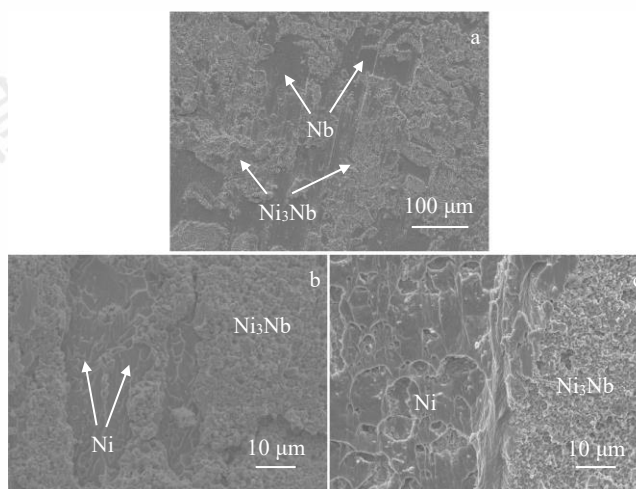


图 10 不同 Ni 中间层厚度下接头的断口形貌图

Fig10 Fracture morphology of the joint with different Ni interlayer thicknesses: (a) 10 μm, (b) 30 μm, (c) 50 μm

## 2.4 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头耐腐蚀性分析

考虑到核工业用结构材料的服役环境，本文进一步对不同厚度 Ni 中间层作用下 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头腐蚀性能进行研究。

对全浸腐蚀试验过程中接头的重量变化进行称量，计算得出的不同时间段下接头腐蚀速率如图 11 所示。随着腐蚀时间的增加，不同中间层厚度下接头的腐蚀速率逐渐下降。随着 Ni 中间层厚度的增加，接头的腐蚀速率逐渐增大，其中 30 μm 和 50 μm 厚 Ni 中间层接头的腐蚀速率远大于 10 μm 厚 Ni 中间层接头，发生了明显的腐蚀失重。当 Ni 中间层厚度为 10 μm 时，接头的腐蚀速率均低于 0.003 %/h，未发生明显的腐蚀失重。

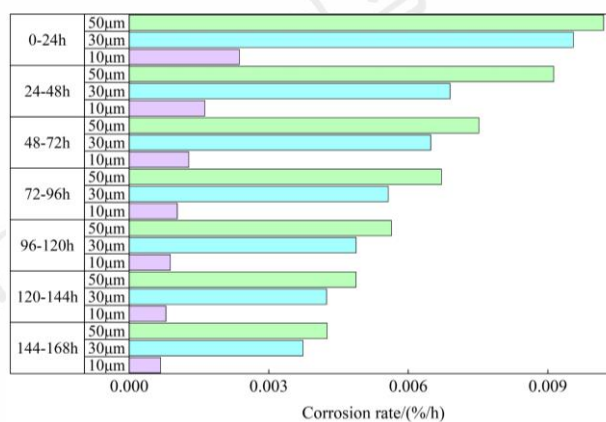


图 11 不同腐蚀时间下接头在浓硝酸中的腐蚀速率

Fig11 The corrosion rate of the joint in concentrated nitric acid at different corrosion times

### 3 结论

本文结合有限元模拟系统地讨论了 Ni 中间层厚度与 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头微观组织、力学性能以及腐蚀性能的关系, 得出以下结论:

1) Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头的典型界面组织为 Zr-4/ $\beta$ -(Zr, Nb)/Nb/Ni<sub>3</sub>Nb/Ni/316SS。当 Ni 中间层厚度从 10  $\mu\text{m}$  增加到 50  $\mu\text{m}$  时, 接头中没有形成新的扩散层, 并且接头中  $\beta$ -(Zr, Nb) 和 Ni<sub>3</sub>Nb 反应层厚度差异较小。接头的抗剪强度随中间层厚度的增加先增加后减小, 在 Ni 中间层厚度为 30  $\mu\text{m}$  时, 扩散连接接头的抗剪强度达到最大值 380MPa。

2) 接头焊后残余应力有限元模拟结果与接头的断裂情况基本吻合。合适的 Ni 中间层厚度有益于缓解 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头残余应力, 提高接头的力学性能。过小的 Ni 中间层厚度难以释放界面间的残余应力。Ni 中间层厚度过大虽可进一步缓解接头残余应力, 但因其良好的延展性导致接头力学性能下降。

3) Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头的腐蚀速率随着 Ni 中间层厚度的减小逐渐降低。减小 Ni 中间层的厚度有利于接头耐腐蚀性能的提升。因此, 需对 Ni 中间层厚度加以调控以兼顾接头耐腐蚀性能和力学性能。

#### 参考文献 References

- [1] Chen Jing, Liu Huiqun, Chi Guangfang *et al. Materials Characterization*[J], 2020, 169: 110632
- [2] Cui Changxing, Li Yanchao, Wang Feng *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2023, 110: 106048
- [3] Lebaili A, Taouinet M, Nibou D *et al. Journal of Materials Engineering and Performance*[J], 2017, 26(7): 3112-3120
- [4] Taouinet M, Kamel NE, Lebaili S. *Materials and Manufacturing Processes*[J], 2013, 28(12): 1327-1334
- [5] Wang Yueyuan, Chai Linjiang, Zhang Fangli *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2022, 109: 105956
- [6] Li Peizhi(李佩志), Tian Zhenye(田振业), Shi Yufeng(石玉峰) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属与工程)[J], 2022, 46(08): 1013-1020
- [7] Cattant F, Crusset D, Feron D. *Materials Today*[J], 2008, 11(10): 32-37
- [8] Alhazaa A, Haneklaus N. *Metals*[J], 2020, 10(5): 613-636
- [9] Ahmad M, Akhter J I, Akhtar M *et al. Journal of Materials Science*[J], 2006, 42(1): 328-331
- [10] Munis A, Zheng Maosheng, Akhter JI *et al. Archives of Metallurgy and Materials*[J], 2019, 64(2): 707-713
- [11] Taouinet M, Lebaili S, Souami N. *Physics Procedia*[J], 2009, 2(3): 1231-1239
- [12] Aboudi D, Lebaili S, Taouinet M *et al. Materials & Design*[J], 2017, 116: 386-94
- [13] Chen Hongsheng, Long Chongsheng, Wei Tianguo *et al. Materials & Design*[J], 2014, 60: 358-62
- [14] Pan Houhong, Liu Baoshuan, Guo Yangyang *et al. Materials Letters*[J], 2019, 240: 185-8
- [15] Wang Zhen, Guo Yangyang, Ren Lingbao *et al. Advanced Engineering Materials*[J], 2021, 23(12): 2100555
- [16] Yang Zhenwen, Zhang Fan, Yang Xu *et al. Advanced Engineering Materials*[J], 2023, 25(13): 1438-1656
- [17] Wei Yanni, Zhu Linghao, Li Yaru *et al. Vacuum*[J], 2023, 213: 112167
- [18] Xia Yueqing, Dong Honggang, Hao Xiaohu *et al. Journal of Materials Processing Technology*[J], 2019, 269: 35-44
- [19] Yang Xiuxiu, Zhang Shihao, Zhu Hang *et al. Crystals*[J], 2022, 12(5): 631
- [20] Karayagiz K, Johnson L, Seede R *et al. Acta Materialia*[J], 2020, 185: 320-339
- [21] Gong Xiaoguo, Xu Weiwei, Cui Can *et al. Materials & Design*[J], 2020, 196: 109174
- [22] Uchic MD, Dimiduk DM, Florando JN *et al. Science*[J], 2004, 305: 986-989
- [23] Li Xingyi, Liu Ke, Song Yanyu *et al. Journal of the European Ceramic Society*[J], 2023, 43(12): 5307-5318
- [24] Okamoto H, Schlesinger ME, Mueller EM. *ASM International*[M], 2016

## The Influence of Ni Interlayer Thickness on the Microstructure and Mechanical Properties of Zr-4/Nb/Ni/316SS Diffusion Bonded Joint

Li Qianru, Zhang Fan, Niu Shiyu, Wang ying, Yang Zhenwen

(Tianjin Key Laboratory of Advanced Joining Technology, Tianjin University, Tianjin 300350, China)

**Abstract:** This study systematically investigates the influence of Ni interlayer thickness on the microstructure, mechanical properties, and corrosion resistance of Zr-4/Nb/Ni/316SS diffusion bonded joints. The experimental results reveal that the typical interface microstructure of the

joints consists of Zr-4/ $\beta$ -(Zr, Nb)/Nb/Ni<sub>3</sub>Nb/Ni/316SS. The shear strength of the joints initially increases and subsequently decreases with increasing Ni interlayer thickness, reaching a peak value of 380 MPa at an interlayer thickness of 30  $\mu\text{m}$ . To elucidate the effect of Ni interlayer thickness on the mechanical properties, the microstructural characteristics of the joint interfaces were characterized, and Abaqus simulations were conducted to analyze the residual stress distribution across the interfaces. The comparative analysis of the mechanical properties and fracture behavior, combined with simulation results, indicates that while thicker Ni interlayers are more effective in alleviating residual stress, excessively thick interlayers lead to a reduction in shear strength due to their enhanced ductility. Additionally, the corrosion resistance of the joints was assessed using full immersion corrosion tests. The results indicate that the corrosion rate decreases with a reduction in Ni interlayer thickness, with the optimum corrosion resistance observed at an interlayer thickness of 10  $\mu\text{m}$ . In conclusion, it is recommended that the Ni interlayer thickness be maintained between 10  $\mu\text{m}$  and 30  $\mu\text{m}$  to achieve a balance between mechanical properties and corrosion resistance.

**Key words:** Ni interlayer thickness; finite element simulation; interfacial organization; shear strength; corrosion resistance

---

Corresponding author: Wang Ying, Ph. D., Tianjin Key Laboratory of Advanced Joining Technology, Tianjin University, Tianjin 300350, P. R. China, Tel: 0086-22-27405889, E-mail: wangycl@tju.edu.cn