

# 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:** 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、力学性能以及耐腐蚀性能的影响。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, 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10~30  $\mu\text{m}$ 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

**中图法分类号:** TG457.1

**文献标识码:** A

**文章编号:** 1002-185X(2025)12-3105-08

## 1 引言

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2种反应层中未出现裂纹, 接头抗剪强度分别达到194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, 剪切断口显示断裂主要沿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。

收稿日期: 2024-12-08

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

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

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,并结合断口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。

本工作探究了 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,研究了 Zr-4/Nb/Ni/316SS 接头的耐腐蚀性能。

## 2 实验

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) 2 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、30 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)。

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。

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( $\text{mm}^2$ )。

对接头腐蚀性能的研究采用全浸实验的方式,该实

表 1 Zr-4 合金和 316SS 的化学成分

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

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

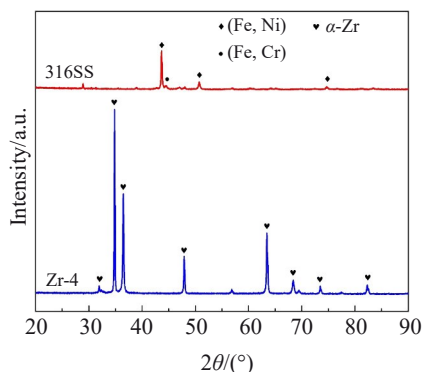


图 1 Zr-4 合金和 316SS 的 XRD 图谱

Fig.1 XRD patterns of Zr-4 alloy and 316SS

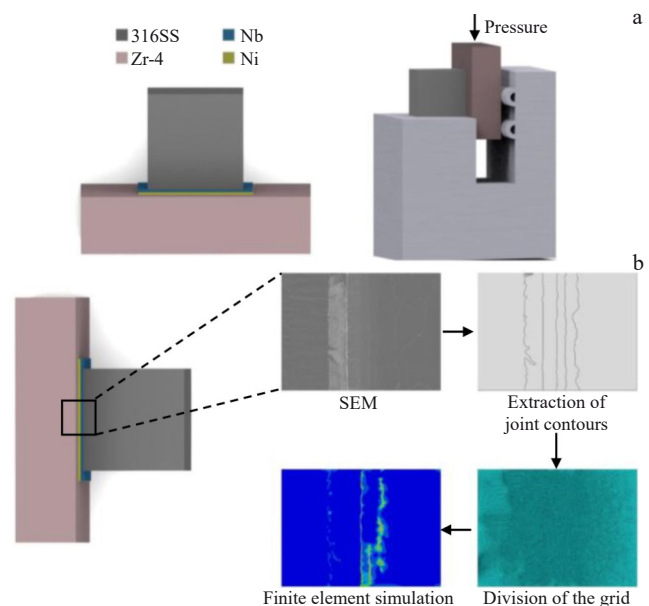


图 2 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头装配图及模拟过程

Fig.2 Assembly diagram (a) and simulation process (b) of Zr-4/Nb/Ni/316SS diffusion bonded joint

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,经乙醇清洗干净并吹干后采用分析天平称量腐蚀前的质量,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,丙酮和乙醇清洗干净并且烘干,称量腐蚀后的质量(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。

$$V_t = \frac{m_0 - m_t}{m_0 t}$$

(2)

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

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<sup>[19-23]</sup>。

### 3 结果与讨论

#### 3.1 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 和 30 μm。结合图 3a 的界面组织图,可以将接头界面组织分为 4 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,其结果列于表 3。A 点 Zr 元素含量为 89.3at%,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 α-Zr 中的固溶度非常低(<0.1wt%),而 β-Zr 和 Nb 之间具有较大的固溶度,可以形成连续固溶体,因此

表 2 有限元模拟相关相的物性参数

Table 2 Physical parameters of correlated phase used for finite element simulation<sup>[19-23]</sup>

Material	Temperature/ ℃	Density/ kg·m <sup>-3</sup>	Elasticity modulus/GPa	Thermal expansivity/×10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup>	Poisson ratio	Specific heat/ J·(kg·K) <sup>-1</sup>	Pyroconductivity/ W·(m·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
316SS	10	7966	194	15.4	0.29	502	14.12
	200	-	185	16.2	0.29	514	16.69
	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
Nb	20	8570	122	8.5	0.33	-	-
	200	-	119	9.7	-	-	-
	600	-	95	11	-	-	-
	800	-	76	12.3	-	-	-
Ni	20	8900	208	15.5	0.31	-	-
	327	-	190	16.1	-	-	-
	527	-	174	16.7	-	-	-
	727	-	158	17.8	-	-	-
β-(Zr, Nb)	127	-	120	25	-	-	-
	427	-	105	27	-	-	-
	827	-	90	31	-	-	-
Ni <sub>3</sub> Nb	-	8900	-	-	0.42	550	85



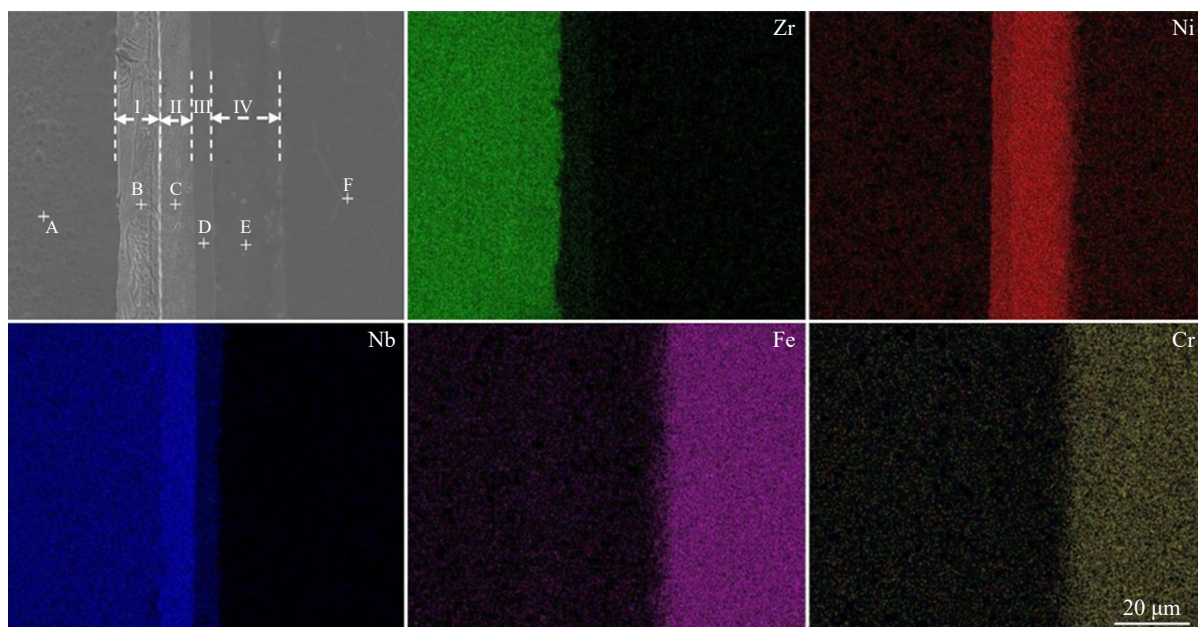


图3 Zr-4/Nb/Ni/316SS扩散连接接头的EDS元素面扫描(820 °C/60 min/10 MPa)

Fig.3 EDS element mappings of Zr-4/Nb/Ni/316SS diffusion bonded joint (820 °C/60 min/10 MPa)

表3 图3a中标记各点的EDS成分分析结果

Table 3 EDS analysis results of each point marked in Fig.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	$\text{Ni}_3\text{Nb}$
E	0.5	0.4	97.7	0.8	0.6	Ni
F	0.3	0.1	8.9	71.6	19.2	316SS

区域I的主要成分为 $\beta$ -(Zr, Nb)固溶体;C点位置Nb占比89.4at%,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26.6at%,Ni含量为71.2at%,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 $\text{Ni}_3\text{Nb}$ ,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97.7at%,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。

### 3.2 Zr-4/Nb/Ni/316SS扩散连接接头力学性能

分别使用10、30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 °C/60 min/10 MPa)显微组织以及相应的EDS元素线扫描结果如图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~4f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)反应层厚度均约在16  $\mu\text{m}$ , $\text{Ni}_3\text{Nb}$ 反应层厚度均约在8  $\mu\text{m}$ 。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和50  $\mu\text{m}$ 的Ni中间层时,剩余的Ni中间层厚度分别为22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5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。结合上述元素线扫结果,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>[16]</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,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。

### 3.3 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。本工作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、6b分别为10  $\mu\text{m}$ 厚的Ni中间层作用下Zr-4/

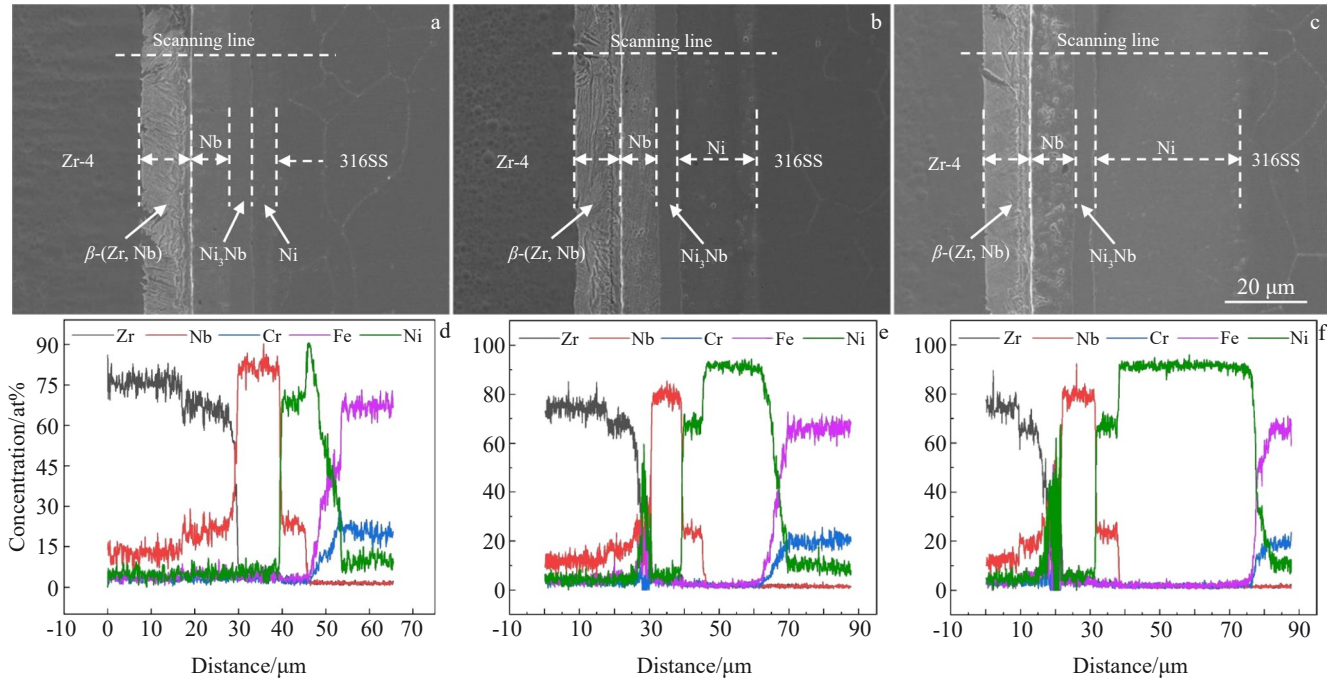


图 4 不同 Ni 中间层厚度下 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头界面组织及相应的 EDS 线扫描结果(820 °C/60 min/10 MPa)

Fig.4 Microstructures and corresponding EDS element line scanning results of Zr-4/Nb/Ni/316SS diffusion bonded joints with different Ni interlayer thicknesses (820 °C/60 min/10 MPa): (a, d) 10 μm, (b, e) 30 μm, and (c, f) 50 μm

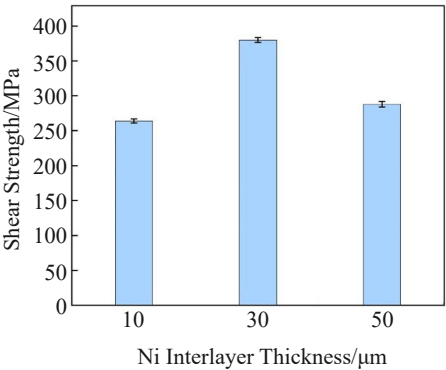


图 5 不同 Ni 中间层厚度下接头的抗剪强度

Fig.5 Shear strength of joints with different Ni interlayer thicknesses

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、 $\text{Ni}_3\text{Nb}$  和 Nb 3 个区域。从图 6c、6d 和图 7b 中可知, 当 Ni 中间层厚度增加到 30  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  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、6f 和图 7c 中可知, 将 Ni 中间层厚度从 30  $\mu\text{m}$  增加到 50  $\mu\text{m}$  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 和 30  $\mu\text{m}$  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 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。Ni 中间层厚度 10  $\mu\text{m}$  下接头的最大  $\sigma_{\max}$  与  $\tau_y$  的值分别为 317 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 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 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和对剪切后的试样进行了断裂路径和断口分析。图 9a 为 Ni 中间层厚度为 30  $\mu\text{m}$  时接头的断裂路径。从图 9 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, 其结果如图 9b 所示, 断口表面存在 Ni、 $\text{Ni}_3\text{Nb}$  和 Nb 3 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 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。当 Ni 中间层的厚度为 10  $\mu\text{m}$  时, 断口表面主要存在  $\text{Ni}_3\text{Nb}$  和 Nb, 表明裂纹主要沿



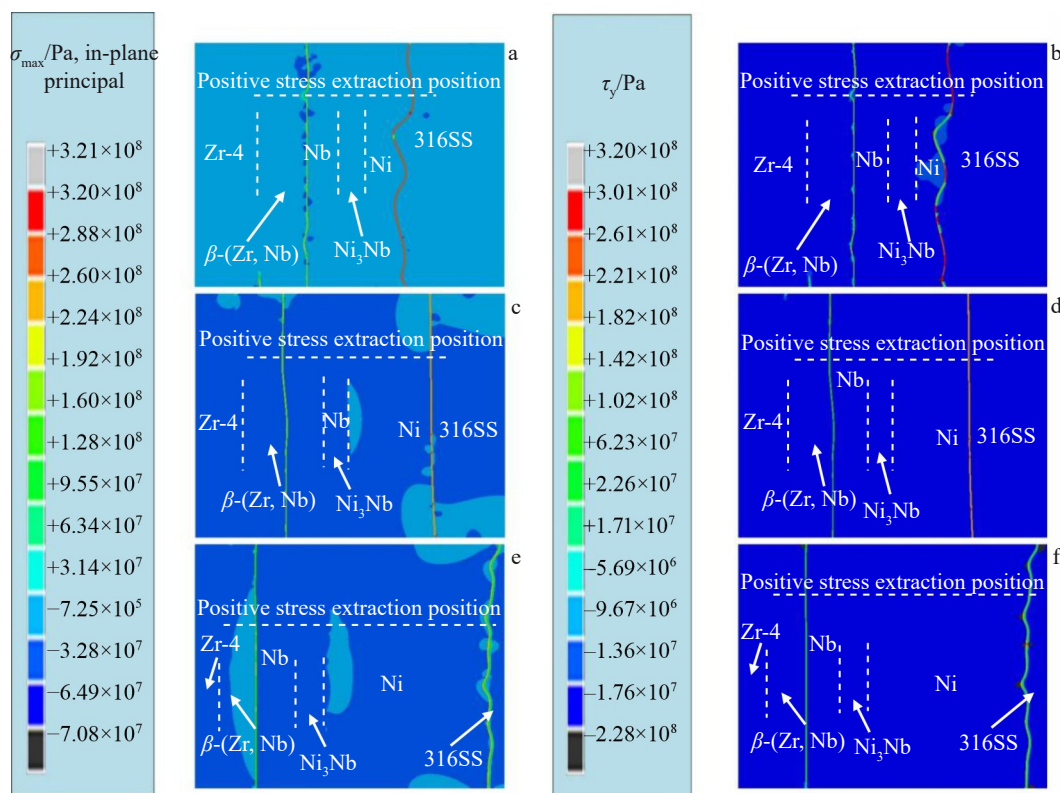


图6 不同厚度Ni中间层作用下的Zr-4/Nb/Ni/316SS扩散连接接头的 $\sigma_{\max}$ 和 $\tau_y$ 分布情况

Fig.6 Distribution of  $\sigma_{\max}$  (a, c, e) and  $\tau_y$  (b, d, f) in Zr-4/Nb/Ni/316SS diffusion bonded joints with different Ni interlayer thicknesses: (a, b) 10  $\mu\text{m}$ , (c, d) 30  $\mu\text{m}$ , and (e, f) 50  $\mu\text{m}$

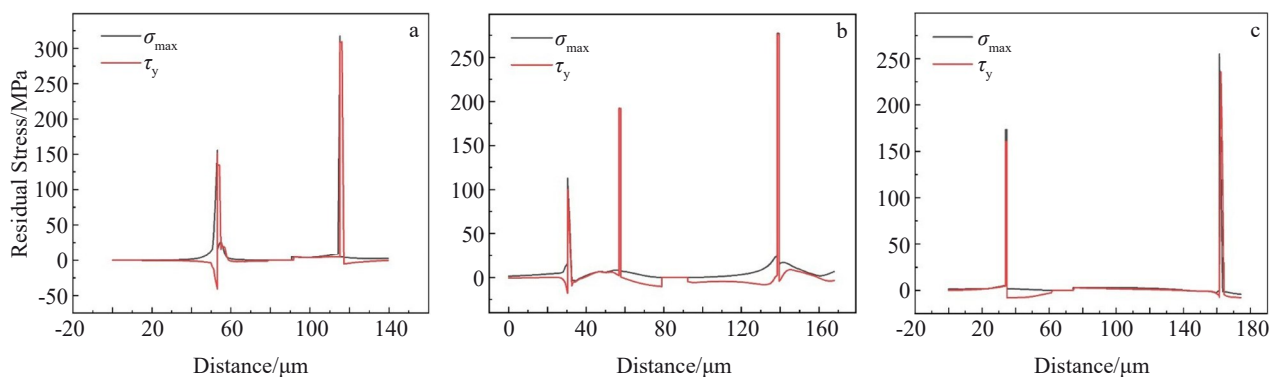


图7 不同厚度Ni中间层作用下接头中 $\sigma_{\max}$ 和 $\tau_y$ 跨界面分布情况(模拟结果提取线位置见图6)

Fig.7 Distribution of  $\sigma_{\max}$  and  $\tau_y$  across interface joints under effect of different Ni interlayer thicknesses: (a) 10  $\mu\text{m}$ , (b) 30  $\mu\text{m}$ , and (c) 50  $\mu\text{m}$

$\text{Ni}_3\text{Nb}$ 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 $\text{Ni}_3\text{Nb}$ 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  $\mu\text{m}$ 时,断口表面可以观察到 $\text{Ni}_3\text{Nb}$ 和Ni,但Ni相对 $\text{Ni}_3\text{Nb}$ 面积占比要小很多,说明断裂主要沿着 $\text{Ni}_3\text{Nb}$ 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  $\mu\text{m}$ 时,断口表面组织主要为 $\text{Ni}_3\text{Nb}$ 和Ni,且Ni的占比较10  $\mu\text{m}$ 厚的Ni中间层的接头

断口有所提升,说明断裂主要沿着 $\text{Ni}_3\text{Nb}$ 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 $\text{Ni}_3\text{Nb}$ 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 $\text{Ni}_3\text{Nb}$ 层。

### 3.4 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,进一步对不

同厚度 Ni 中间层作用下 Zr-4/Nb/Ni/316SS 扩散连接接头耐腐蚀性能进行研究。

对全浸腐蚀试验过程中接头的质量变化进行称量, 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 和 50  $\mu\text{m}$  厚 Ni 中间层接头的腐蚀速

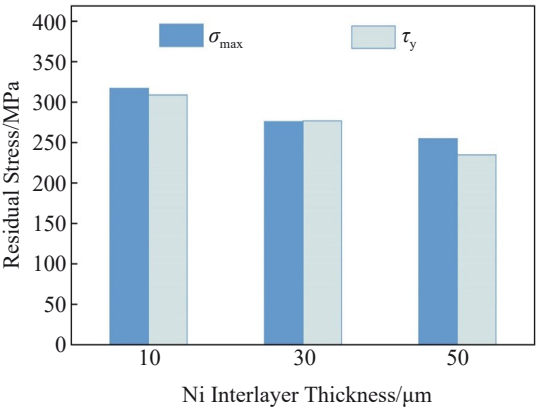


图 8 不同 Ni 中间层厚度作用下接头的最大残余应力  
Fig.8 Maximum residual stresses of joints under effect of different Ni interlayer thicknesses

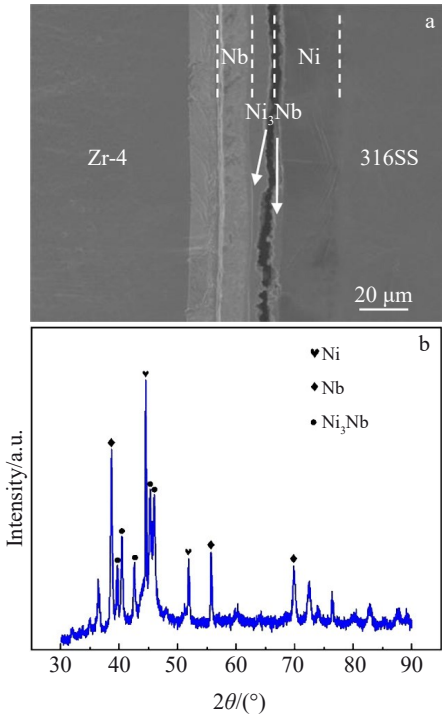


图 9 30  $\mu\text{m}$  厚 Ni 中间层作用下接头的断裂路径照片和 XRD 图谱  
Fig.9 Fracture path image (a) and XRD pattern (b) of joint under effect of Ni interlayer thickness of 30  $\mu\text{m}$

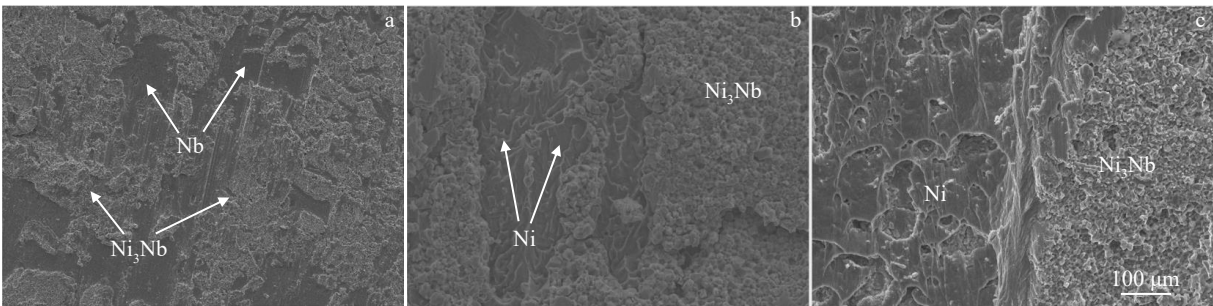


图 10 不同 Ni 中间层厚度下接头的断口形貌  
Fig10 Fracture morphologies of joint with different Ni interlayer thicknesses: (a) 10  $\mu\text{m}$ , (b) 30  $\mu\text{m}$ , and (c) 50  $\mu\text{m}$

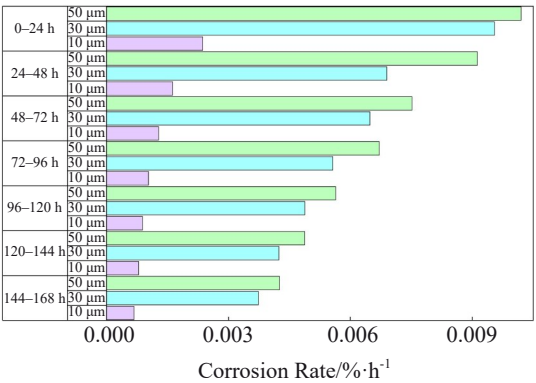


图 11 不同腐蚀时间下接头在浓硝酸中的腐蚀速率  
Fig.11 Corrosion rate of joint in concentrated nitric acid for different corrosion time

率远大于 10  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  时, 接头的腐蚀速率均低于 0.003%/h, 未发生明显的腐蚀失重。

## 4 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/ $\text{Ni}_3\text{Nb}$ /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  $\text{Ni}_3\text{Nb}$  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 380 MPa。

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
- [4] Taouinet M, Kamel N E, Lebaili S. *Materials and Manufacturing Processes*[J], 2013, 28(12): 1327
- [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*(稀有金属材料与工程)[J], 1984(1): 65
- [7] Cattant F, Crusset D, Feron D. *Materials Today*[J], 2008, 11(10): 32
- [8] Alhazaa A, Haneklaus N. *Metals*[J], 2020, 10(5): 613
- [9] Ahmad M, Akhter J I, Akhtar M *et al.* *Journal of Materials Science*[J], 2006, 42(1): 328
- [10] Munis A, Zheng M S, Akhter J I *et al.* *Archives of Metallurgy and Materials*[J], 2019, 4(2): 707
- [11] Taouinet M, Lebaili S, Souami N. *Physics Procedia*[J], 2009, 2(3): 1231
- [12] Aboudi D, Lebaili S, Taouinet M *et al.* *Materials & Design*[J], 2017, 116: 386
- [13] Chen Hongsheng, Long Chongsheng, Wei Tianguo *et al.* *Materials & Design*[J], 2014, 60: 358
- [14] Pan Houhong, Liu Baoshuan, Guo Yangyang *et al.* *Materials Letters*[J], 2019, 240: 185
- [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
- [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
- [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
- [21] Gong Xiaoguo, Xu Weiwei, Cui Can *et al.* *Materials & Design*[J], 2020, 196: 109174
- [22] Uchic M D, Dimiduk D M, Florando J N *et al.* *Science*[J], 2004, 305: 986
- [23] Li Xingyi, Liu Ke, Song Yanyu *et al.* *Journal of the European Ceramic Society*[J], 2023, 43(12): 5307
- [24] Okamoto H, Schlesinger M E, Mueller E M. *Alloy Phase Diagrams*[M]. Ohio: ASM International, 2016

## Influence of Ni Interlayer Thickness on the Microstructure and 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:** The influence of Ni interlayer thickness on the microstructure, mechanical properties, and corrosion resistance of Zr-4/Nb/Ni/316SS diffusion bonded joints was investigated. The 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 the increase in Ni interlayer thickness, reaching a peak value of 380 MPa at interlayer thickness of 30  $\mu$ 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 the thicker Ni interlayers are more effective in alleviating residual stress, but excessively thick interlayers lead to a reduction in shear strength due to their enhanced ductility. Additionally, the corrosion resistance of the joints was assessed by full immersion corrosion tests. The results indicate that the corrosion rate decreases with a reduction in Ni interlayer thickness, and the optimum corrosion resistance of joint is achieved at an interlayer thickness of 10  $\mu$ m. In conclusion, it is recommended that the Ni interlayer thickness needs to be maintained between 10  $\mu$ m and 30  $\mu$ m to achieve a balance between mechanical properties and corrosion resistance.

**Key words:** Ni interlayer thickness; finite element simulation; interface microstructure; 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