

# 连接温度对Zr/Ta扩散连接接头界面组织及性能的影响

赵梓诚<sup>1</sup>, 高宇<sup>2</sup>, 刘忠亮<sup>2</sup>, 胡锡文<sup>2</sup>, 李茜茹<sup>1</sup>, 牛士玉<sup>1</sup>, 杨振文<sup>1</sup>, 王颖<sup>1</sup>

(1. 天津大学 材料科学与工程学院 天津市现代连接技术重点实验室, 天津 300350)

(2. 中国核电工程有限公司, 北京 100840)

**摘要:** 锆合金凭借优异的耐腐蚀性能和低的热中子吸收截面, 在核工业领域受到了极大的关注及应用, 特别是用于腐蚀环境的溶解器设备。本工作对Zr-3合金和难熔金属钽的扩散连接界面组织及力学性能进行了研究, 探究了扩散连接温度对钽/钽接头剪切强度的影响, 并对连接接头界面结构和断口进行分析, 以及对连接接头的耐腐蚀性能做了初步研究。结果表明, 接头典型界面结构为Zr/ $\alpha$ -Zr+ $\beta$ -(Zr,Ta)固溶体/Ta, 扩散层厚度随连接温度升高逐渐增厚。接头剪切强度随温度升高呈现先上升后下降的变化趋势, 900 °C-30 min-10 MPa的连接工艺下接头强度达到最大值, 为385 MPa, 断口呈现混合断裂特征。此外, 锆/钽扩散连接接头展现出较好的耐腐蚀性能。

**关键词:** 扩散连接; Zr-3合金; 钽; 剪切强度; 腐蚀

中图法分类号: TG454

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2026)12-3117-08

## 1 引言

锆合金因其优异的耐腐蚀性能和低热中子吸收截面, 在核工业中广泛应用于极端腐蚀环境, 例如溶解器<sup>[1]</sup>。然而, 随着核反应堆设计复杂性的提升, 单一锆合金材料难以满足多元化服役需求, 亟需与高性能异种金属实现可靠连接。金属钽(Ta)作为典型难熔金属, 不仅具有与锆相近的耐硝酸腐蚀能力, 其高温强度及抗辐照性能亦可有效在极端工况下满足需求<sup>[2-3]</sup>。因此, 实现锆合金与金属钽的高质量连接对提升核设备综合性能具有重要意义。

目前, 锆与异种金属的连接技术主要包括熔焊、钎焊及爆炸焊等<sup>[4-6]</sup>。然而, 传统熔焊易在界面形成脆性金属间化合物(如Zr-Fe相), 显著降低接头力学性能与耐蚀性<sup>[7]</sup>; 钎焊可显著降低热输入, 但钎料及界面反应产物的选择性腐蚀问题限制了钎焊接头在核环境中的应用<sup>[8]</sup>; 爆炸焊虽能实现高强度结合, 但其高成本与工艺复杂性难以满足精密设备制造需求<sup>[9]</sup>。相较之下, 真空扩散连接通过原子固态扩散实现冶金结合, 可有效抑制脆性相生成, 同时避免熔焊带来的热影响区劣化, 是锆与钽连接的理想选择<sup>[10]</sup>。

近年来, 学者针对锆合金扩散连接的工艺优化与性能调控展开系列研究。Yang等<sup>[11]</sup>通过超声冲击处理在Zr-4合金表面制备梯度纳米结构, 发现纳米晶可使扩散激活

能降低21 kJ/mol, 加速界面孔洞闭合并抑制Zr(Fe,Cr)<sub>2</sub>等脆性第二相粒子聚集, 使接头剪切强度提升至376.9 MPa, 且连接温度可降低约40 °C; Wang等<sup>[12]</sup>在Zr-4合金自扩散连接研究中证实, 温度过高(如820 °C)会导致晶粒粗化与Zr(Fe,Cr)<sub>2</sub>脆性相析出, 反而降低接头强度, 800 °C/30 min为最优工艺, 剪切强度达349 MPa; 另有研究表明, 添加Nb中间层可通过共析转变形成 $\beta$ -(Zr,Nb)相, 实现Zr-4合金在760 °C的低温扩散连接, 接头抗拉强度达454 MPa, 有效平衡了低温化与高性能需求<sup>[13]</sup>。这些研究为锆合金扩散连接提供了工艺优化思路, 但主要聚焦于同种Zr合金或Zr与Nb、不锈钢等异种金属的连接, 对Zr合金与Ta的扩散连接机制仍缺乏系统探究。

锆与钽的扩散焊面临两大核心挑战: 其一, 二者晶体结构差异( $\alpha$ -Zr为密排六方<sup>[14]</sup>, Ta为体心立方)导致高温扩散时界面相容性较差; 其二, 锆的高氧亲和力易在表面形成氧化膜, 阻碍原子扩散<sup>[15]</sup>。此外, 学者研究发现连接温度与压力<sup>[16]</sup>是影响异种合金扩散连接接头力学性能的关键参数<sup>[17]</sup>。然而, 目前对于Zr合金和金属Ta的扩散连接仍缺乏系统深入的研究。通过观察锆钽金属二元相图可知钽与锆在高温下可形成连续固溶体( $\beta$ -(Zr,Ta)相)<sup>[18]</sup>, 其良好的热稳定性与耐蚀性为锆/钽连接界面的性能优化提供了可能。优化连接工艺参数以调控Zr-Ta界面固溶体的形成, 为获得高结合强度的Zr/Ta连接接头提供可行性。

收稿日期: 2025-12-16

基金项目: 国家自然科学基金联合基金(U24B2023)

作者简介: 赵梓诚, 男, 2001年生, 硕士生, 天津大学材料科学与工程学院天津市现代连接技术重点实验室, 天津 300350, E-mail: zhaozicheng0424@163.com

本工作针对锆与钽的扩散焊界面组织演化规律展开研究,系统探讨温度参数对界面结构及力学性能的影响,为核设备异种材料连接提供理论支持。

## 2 实验

采用纯金属 Ta 和 Zr-3 合金作为母材进行扩散连接,试验在高温真空扩散炉(MZ-80-15Y)中进行,该炉真空度可保持在  $1 \times 10^{-3}$  Pa 以下。

连接前,将锆合金加工成  $7 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$  的试样,钽待焊试样的尺寸为  $11 \text{ mm} \times 11 \text{ mm} \times 5.2 \text{ mm}$ 。将试样待焊表面用砂纸打磨至 7000#,以去除氧化膜。然后将其浸泡于丙酮溶液中,并进行 15 min 的超声清洗,以去除表面污垢。清洗后立刻进行装配防止空气中暴露时间过久氧化,装配过程如图 1 所示,锆合金置于钽的上侧。为了更好地观察接头中的微观界面组织,将试样打磨抛光进行金相处理后,浸泡在由 10 mL 氢氟酸、45 mL 浓硝酸和 45 mL 去离子水组成的混合溶液中腐蚀 10 s,然后依次用水和乙醇冲洗试样表面的腐蚀液,并用吹风机吹干待用。

图 1b 为扩散连接工艺图,升温时加热速率为  $10^\circ\text{C}/\text{min}$ ,在 400 和  $800^\circ\text{C}$  时分别保温 10 min,之后以  $2^\circ\text{C}/\text{min}$  的速率缓慢升温至最高温度,并在最高温度下保温不同时间。 $2^\circ\text{C}/\text{min}$  的升温速率可保证焊接件受热均匀,减少应力集中。保温结束后,以  $5^\circ\text{C}/\text{min}$  的速率进行降温,降温至  $400^\circ\text{C}$  以下后,程序停止,试样随炉冷却至室温。扩散连接温度一般都在  $0.5T_m \sim 0.8T_m$  (母材熔化温度) 范围内<sup>[19]</sup>。根据前期研究和调研发现<sup>[17,20-24]</sup>,扩散连接温度最终选在  $880 \sim 920^\circ\text{C}$ ,保温时间为 30 min (保温时间过长会导致界面化合物增多,母材性能恶化)。焊接过程中施加的压力为 10 MPa。

剪切测试所使用设备为电子万能试验机(MTS-E45.105),试验温度为室温,剪切加载速率为  $0.06 \text{ mm/s}$ ,图 2 为剪切装配图。各组工艺参数连接接头剪切试验需至少重复 3 次测试,并最终取平均值进行分析。采用热场发射扫描电镜(JSM-7800F)对接头界面及断口进行拍

摄,观察其形貌组织。采用电制冷能谱探头(EDS)对界面元素分布进行分析。对  $900^\circ\text{C}$  和  $920^\circ\text{C}$  接头的焊接界面使用腐蚀液(成分见表 1)进行腐蚀<sup>[21-23]</sup>,在保持  $50^\circ\text{C}$  恒温条件下全浸腐蚀 7 d,观察接头界面组织。

同时对  $900^\circ\text{C}$  和  $920^\circ\text{C}$  接头进行电化学腐蚀测试,电解液采用 160 mL 体系的  $3.5 \text{ mol/L}$  硝酸;测试温度控制为室温。采用三电极体系,工作电极为封装后的 Zr-Ta 接头试样,参比电极为饱和甘汞电极(SCE),对电极为铂片。测试前先将三电极浸入电解液,静置 30 min 或稳定后开路电位(OCP)波动  $\leq \pm 5 \text{ mV}/10 \text{ min}$ ;随后进行电化学阻抗谱(EIS)测试,频率范围设定为  $100 \text{ kHz} \sim 100 \text{ mHz}$ ,施加  $10 \text{ mV}$  的正弦电位扰动;最后进行动电位极化曲线测试,扫描范围为  $-2 \text{ V}$  (相对于 OCP)  $\sim +2.0 \text{ V}$  (相对于 SCE),扫描速率为  $0.5 \text{ mV/s}$ 。

## 3 结果与讨论

### 3.1 典型界面组织分析

图 3 为在  $900^\circ\text{C}$ -30 min-10 MPa 条件下获得的 Zr-3 与 Ta 接头的典型界面微观组织,接头扩散层主要分为 I、II 两个区域。I 区为锆侧扩散层,II 区为钽侧的过渡层。表 2 中的点扫描分析结果表明,I 区主要由灰白色针状的  $\alpha$ -Zr 组织和夹杂的深灰色组织 Ta 组成,由于该区域距离扩散界面较远,Ta 在此区域的扩散受到限制,含量较低,所形成的  $\beta$ -(Zr,Ta) 固溶体含量少,主要成分还是  $\alpha$ -Zr 相。由锆-钽相图可知,在高温扩散过程中  $\alpha$ -Zr 转化为  $\beta$ -Zr,  $\alpha$ -Zr 为密排六方结构,而  $\beta$ -Zr 和 Ta 为体心立方结构,高温下  $\beta$ -Zr 和 Ta 固溶度较大,有利于形成  $\beta$ -(Zr,Ta) 固溶体;冷却过程中  $\beta$ -Zr 部分转变为  $\alpha$ -Zr, Zr 与 Ta 的固溶度下降,  $\alpha$ -Zr 析出,形成灰白色的针状或板条状组织<sup>[24]</sup>,如图 3b 所示。Ta 在  $\alpha$ -Zr 中溶解度很小,且随温度继续降低固溶度会进一步下降。随着 Ta 从  $\alpha$ -Zr 中的排出,针状  $\alpha$ -Zr 之间的区域 Ta 浓度会有所升高,Zr 与 (Zr,Ta) 固溶体最终相间分布。

在接头 II 区存在一些块状组织(图 3),该区域靠近 Ta 基体, Ta 含量较高。结合表 2 点 5 (Ta 29.77at%, Zr

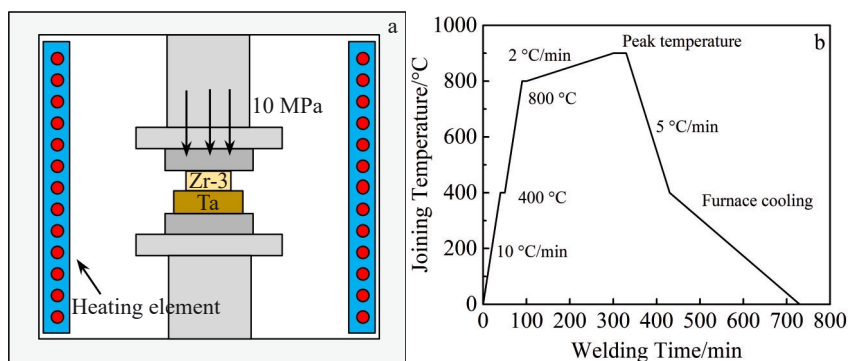


图 1 扩散连接的装配示意图及连接工艺

Fig.1 Assembly diagram (a) and bonding process (b) of diffusion bonding

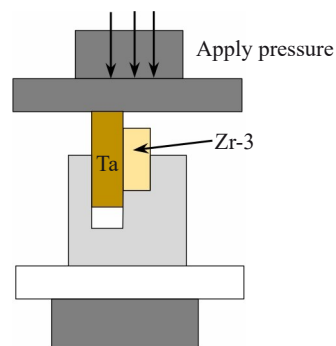


图2 剪切测试装配图  
Fig.2 Assembly diagram of shear test

表1 腐蚀液成分含量

| Table 1 Composition of etching solution |                                                    |                                                   |
|-----------------------------------------|----------------------------------------------------|---------------------------------------------------|
| Etching solution component              | Concentration before corrosion/mol·L <sup>-1</sup> | Concentration after corrosion/mol·L <sup>-1</sup> |
| HNO <sub>3</sub>                        | 3.50                                               | 3.50                                              |
| Ru                                      | 2.60×10 <sup>-2</sup>                              | 2.15×10 <sup>-2</sup>                             |
| F <sup>-</sup>                          | 1.38×10 <sup>-4</sup>                              | 1.37×10 <sup>-4</sup>                             |
| Cl <sup>-</sup>                         | 8.40×10 <sup>-5</sup>                              | 8.40×10 <sup>-5</sup>                             |
| Br <sup>-</sup>                         | 1.20×10 <sup>-4</sup>                              | 1.20×10 <sup>-4</sup>                             |
| I <sup>-</sup>                          | 7.25×10 <sup>-5</sup>                              | 7.22×10 <sup>-5</sup>                             |

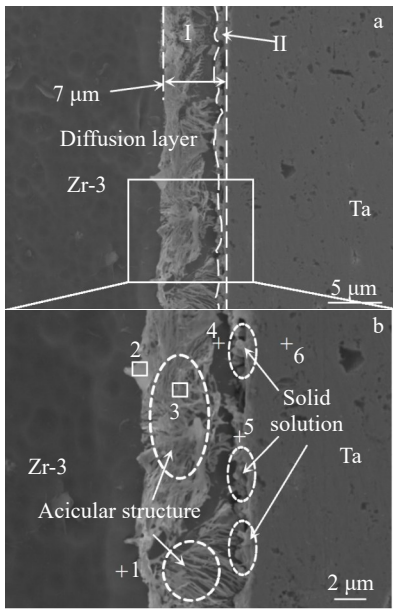


图3 在 900 °C-30 min-10 MPa 工艺参数下获得的 Zr/Ta 接头 SEM 照片及局部组织放大图  
Fig.3 SEM image of the interface structure of Zr/Ta joint obtained under the process parameters of 900 °C-30 min-10 MPa (a) and enlarged view of the rectangle area marked in Fig.3a (b)

70.23at%)扫描结果分析,这些块状组织为(Zr,Ta)固溶体。高温条件下钽钼形成固溶体,随着温度降低,部分(Zr,Ta)固溶体分解,形成的 $\alpha$ -Zr向钽基体侧呈针状生长,

表2 图3b各点的化学成分

Table 2 Chemical composition of marked points in Fig.3b (at%)

| Point | Ta    | Zr    | Main phase       |
|-------|-------|-------|------------------|
| 1     | 3.10  | 96.90 | $\alpha$ -Zr     |
| 2     | 30.14 | 69.86 | Ta, $\alpha$ -Zr |
| 3     | 25.07 | 74.93 | Ta, $\alpha$ -Zr |
| 4     | 18.85 | 81.15 | $\alpha$ -Zr     |
| 5     | 29.77 | 70.23 | (Zr,Ta)          |
| 6     | 92.51 | 7.49  | Ta               |

而靠近钽基体的(Zr,Ta)固溶体组织由于 Ta 含量较高,不易分解出 $\alpha$ -Zr,最终冷却到室温会保留下来<sup>[25]</sup>。

将各个参数下的微观扫描照片与 EDS 图对照可以明显观察到 I 区与 II 区组织形貌不同,并且 I 区与 II 区界面处对应着 EDS 图中钽钼浓度相同的界面位置,该界面应为钽钼扩散连接前的原始界面。观察图 4、图 5 可知,在界面两侧, Ta 扩散形成的 I 区宽度远大于 Zr 扩散形成的 II 区宽度,880 °C 时 I 区宽度约 2.5  $\mu\text{m}$ , II 区仅 0.5  $\mu\text{m}$ ,扩散层厚度为 3  $\mu\text{m}$ ; 900 °C 时 I 区宽度达 6  $\mu\text{m}$ , II 区约 1  $\mu\text{m}$ ,扩散层厚度为 7  $\mu\text{m}$ ; 920 °C 时 I 区宽度达 8  $\mu\text{m}$ , II 区约 2  $\mu\text{m}$ ,扩散层厚度为 10  $\mu\text{m}$ 。区域宽度差异本质是元素扩散速度不同的宏观体现。同时,图 5 的 EDS 线扫描曲线中, Ta 元素的浓度变化跨度更大,浓度梯度更平缓,反映其扩散范围更广、更充分,而 Zr 元素的浓度变化主要集中在靠近 Ta 基体的窄小区域,进一步佐证 Ta 的扩散速度更快<sup>[26]</sup>。

同时采用 Matano 法分别计算钽和钼扩散系数<sup>[27]</sup>。通过对 880、900 和 920 °C 接头 EDS 线扫描(步长 0.1  $\mu\text{m}$ )进行平滑处理,以原始界面为基准(标记为  $x=0$ , Zr 侧为  $x$  负方向, Ta 侧为  $x$  正方向),剔除浓度跳变异常点后,对数据进行平滑处理,得到连续的 Ta、Zr 浓度分布曲线  $c(x)$ 。对 Matano 平面进行确定:根据扩散偶物质守恒原理, Matano 平面是满足“Ta 扩散至 Zr 侧的总质量与 Zr 扩散至 Ta 侧的总质量相等”的虚拟平面,其坐标  $x_0$  通过积分条件  $\int_0^{100} (x-x_0)dc=0$  确定。利用 Origin 软件的积分工具,对不同  $x_0$  值进行迭代计算,直至积分结果趋近于 0 (误差  $\leq 1 \mu\text{m}\cdot\text{at}\%$ ),最终确定各温度下的 Matano 平面位置(880 °C 时  $x_0=-1.2 \mu\text{m}$ , 900 °C 时  $x_0=-2.5 \mu\text{m}$ , 920 °C 时  $x_0=-3.0 \mu\text{m}$ )。

基于 Fick 第二定律的 Boltzmann-Matano 变换<sup>[27]</sup>扩散系数计算公式为:

$$D(c) = -\frac{1}{2t} \times \frac{\int_{c_R}^c (x - x_0)dc}{\frac{dc}{dx}}$$

式中:  $t$  为扩散连接保温时间(30 min=1800 s);  $c_R$  为扩散偶中一侧母材的初始浓度(at%);  $\int_{c_R}^c (x-x_0)dc=0$  为浓度区间  $[c_R, c]$  内的积分面积;  $dc/dx$  为浓度  $c$  处的浓度梯度。

选取 20at%、40at%、60at%、80at% 四个特征浓度点, 分别计算各温度下 Ta 与 Zr 的扩散系数, 取平均值作为元素的平均扩散系数。结果显示, 880 °C 时 Ta 的平均扩散系数  $D_{Ta}=8.5\times 10^{-13}$  cm<sup>2</sup>/s, Zr 的平均扩散系数  $D_{Zr}=1.1\times 10^{-13}$  cm<sup>2</sup>/s; 900 °C 时 Ta 的平均扩散系数  $D_{Ta}=1.39\times 10^{-12}$  cm<sup>2</sup>/s, Zr 的平均扩散系数  $D_{Zr}=1.8\times 10^{-13}$  cm<sup>2</sup>/s; 920 °C 时 Ta 的平均扩散系数  $D_{Ta}=2.9\times 10^{-13}$  cm<sup>2</sup>/s, Zr 的平均扩散系数  $D_{Zr}=2.1\times 10^{-13}$  cm<sup>2</sup>/s。所有温度下钽的扩散系数均高于锆, 该方法一定程度上验证了钽扩散速度大于锆。

在升温阶段, Ta 和 Zr 相互扩散形成  $\beta$ -(Zr,Ta) 固溶体, 并优先在靠近钽基体侧形成, 填充钽钼原始界面处间隙。随后  $\beta$ -(Zr,Ta) 向锆基体生长, 由于各处生长速度不完全一致,  $\beta$ -(Zr,Ta) 之间会有未完全闭合的孔隙; 在保温阶段,  $\beta$ -(Zr,Ta) 主要向平行于原始界面的方向生长, 填充  $\beta$ -(Zr,Ta) 之间未完全闭合的间隙。此时扩散层主要由 Zr、 $\beta$ -(Zr,Ta) 和 Ta 三种相组成; 在降温阶段, Zr 与 Ta 的固溶度下降导致  $\alpha$ -Zr 析出形成灰白色的针状或板条状组织。部分  $\beta$ -(Zr,Ta) 分解形成针状  $\alpha$ -Zr 组织, 并且沿  $\beta$ -(Zr,Ta) 相特定惯习面上平行生长。在  $\alpha$ -Zr 形核生长时 Ta 向四周排出, 而靠近钽基体侧 Ta 浓度较大, 不利于  $\alpha$ -Zr 的形核长大, 因此  $\beta$ -(Zr,Ta) 分解出的  $\alpha$ -Zr 向锆侧形核生长。如图 3 所示, 即  $\alpha$ -Zr 向左侧生长, 最终达到一定距离后针状组织的  $\alpha$ -Zr 会相互影响制约生长形核, 并且触及  $\beta$ -(Zr,Ta) 相, 最终形成灰白色针状组织和深灰色组织相间的 I 区域。II 区域靠近 Ta 基体侧 Ta 浓度大,  $\beta$ -(Zr,Ta) 难以分解形成  $\alpha$ -Zr 相, 因此 II 区域主要为 (Zr,Ta) 固溶体。

### 3.2 焊接温度对扩散接头界面结构的影响

扩散连接温度为 880、900、920 °C 的 Zr-3/Ta 接头界面结构如图 4 所示。可见 Zr-3 与 Ta 的连接界面组织呈层状分布, 均可分为 I、II 两个区域, I 区域靠近锆基体较宽, II 区域靠近钽基体较窄。随着扩散温度的升高, 接头界面扩散层厚度逐渐增大。依次在不同焊接温度的焊接接头扩散层处随机选取五个位置测量焊接接头扩散层厚度并取平均值, 统计得到不同温度接头扩散层厚度。观察图 4a 发现, 880 °C 获得的接头扩散层存在部分未焊合区

域, 并且 I 区域内的 (Zr,Ta) 固溶体及其分解相呈交替块状分布, 且极不均匀。随着温度升高, 接头 I 区域出现明显的灰白色针状组织, 如图 4b 和 4c 所示, 结合扫描结果分析该针状组织为  $\alpha$ -Zr, 并且通过观察电子扫描图像可以发现 900 °C 接头的扩散层中针状组织比 920 °C 的接头更稠密, 这是因为温度升高, Zr 和 Ta 之间扩散更剧烈, 扩散距离更长, 组织分布趋于均匀。较低温度下获得的接头中, 灰白色针状  $\alpha$ -Zr 组织的集中分布现象得以减弱。图 5 中的线扫描图谱结果也印证了这一现象。线扫描结果中扩散层 I 区域 Zr 与 Ta 并不是平滑的上升或下降曲线, 而是曲折的曲线, 凸峰的分布则代表了针状分布的  $\alpha$ -Zr 的疏密程度。900 和 920 °C 接头扩散层区域显示的凸峰相比于 880 °C 接头更密并且数量更多, 这对应于 880 °C 接头 I 区域中的针状  $\alpha$ -Zr 较少。

### 3.3 焊接温度对扩散接头力学性能的影响

对扩散连接温度为 880、900、920 °C 的 Zr-3/Ta 接头进行剪切性能测试, 结果如图 6 所示。焊接接头剪切强度随温度的升高先增加后减小, 在 880 °C 下的焊接接头强度最低, 仅为 143 MPa, 900 °C 下的接头强度最高, 达到 385 MPa。在 900 和 920 °C 温度下测试接头剪切强度时接头最终发生屈服, 此时接头结合强度达到了母材钽的屈服强度, 而对于不同参数接头, 屈服和断裂发生于靠近扩散层的母材锆侧, 该区域为接头的薄弱环节, 且随着温度升高晶粒尺寸变大, 根据 Hall-Petch 公式<sup>[28]</sup>, 晶粒尺寸变大导致 Zr 基体的位错滑移阻力减小, 自身承载能力下降; 另一方面温度更高元素扩散更剧烈, 形成更多的脆性金属间化合物, 进一步导致接头强度降低<sup>[11]</sup>。并且随着温度升高, 金属母材的屈服强度降低<sup>[29]</sup>, 使得接头发生塑性断裂所需的临界载荷变小, 多种因素协同作用导致接头整体强度降低。最终使接头强度在 900 °C 后随温度升高而降低。

880 °C 下, 温度低保温时间短导致原子扩散和界面反应程度低, 所形成的扩散层厚度只有 3  $\mu$ m 左右, 如图 4a 所示, 并且扩散层均一化程度较低, 固溶体与析出相呈块状不均匀分布, 扩散层变形协调能力较差, 加之界面存在未焊合缺陷, 接头剪切强度较小, 仅为 143 MPa。随

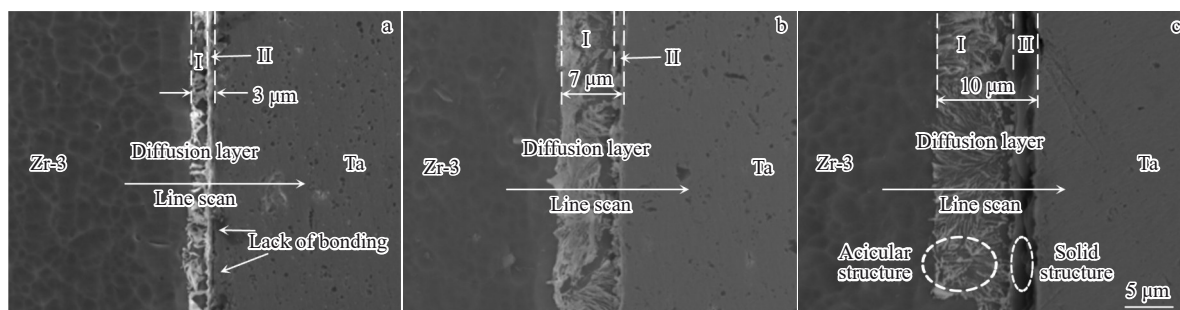


图 4 不同焊接温度下 Zr/Ta 接头的微观组织

Fig.4 Microstructures of Zr/Ta diffusion bonding joints obtained under different temperatures: (a) 880 °C; (b) 900 °C; (c) 920 °C

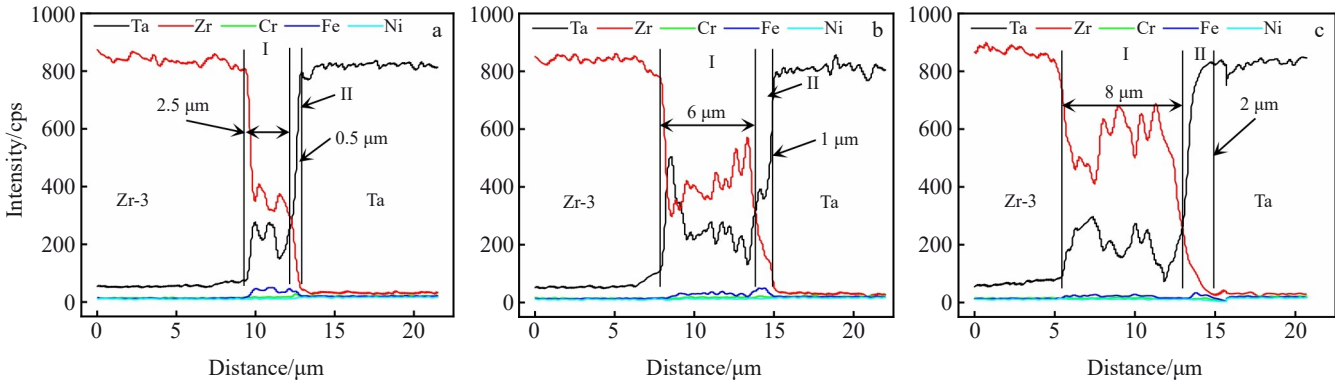


图5 不同焊接温度下接头界面的EDS线扫描结果

Fig.5 EDS line scan results of the joint interface obtained under different temperatures: (a) 880 °C; (b) 900 °C; (c) 920 °C

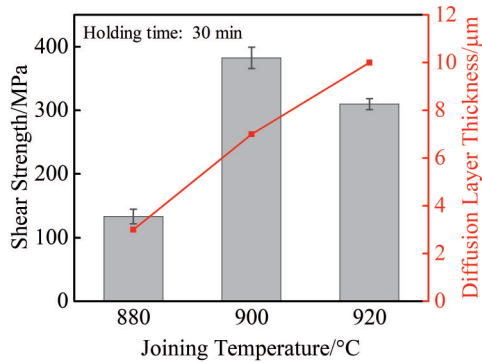


图6 不同温度下扩散焊接头的剪切强度及扩散层厚度

Fig.6 Shear strength and diffusion layer thickness of diffusion bonding joints obtained under different temperatures

着温度的升高,原子扩散加剧,接头界面扩散层厚度增加,且未焊合孔洞消失,接头强度提高。900 °C接头的剪切强度相比于920 °C接头更高,观察图4和图5可知,两个温度参数下的扩散层II区域厚度接近,通过Image-Pro Plus图像分析软件统计白色针状 $\alpha$ -Zr区域和黑色区域面积比例来确定网状结构的稠密程度,900及920 °C温度下白色针状 $\alpha$ -Zr组织平均面积占扩散接头I区部分面积比例约为68%及47%。而880 °C温度下 $\alpha$ -Zr组织呈块状不均匀分布,并未形成网状结构。因此900 °C接头扩散层I

区域针状组织的 $\alpha$ -Zr更为稠密,分布更均匀,形成交错的网状结构,网状结构的存在使接头强度提升。因此扩散结合层强度不仅取决于扩散层厚度大小,还取决于扩散层组织的排列形貌,应选取合适工艺调控界面形貌来以获得较高强度。

3.4 断口形貌分析

为了进一步分析接头的断裂行为,本研究对880、900和920 °C温度下获得的Zr-3/Ta接头的钎合金侧断口进行SEM和EDS扫描分析。图7a所示为880 °C接头断口形貌,观察发现钎侧断口整体较为平整,有部分灰白色相存在,断口呈现脆性断裂特征。根据表3扫描能谱结果分析大部分区域为 $\alpha$ -Zr,并有部分Ta及(Zr,Ta)固溶体存在,结合图8钎侧XRD图谱分析,880 °C接头断裂发生在扩散层I区域内靠近II区域过渡层的部分,该区域含 $\alpha$ -Zr较多并伴有未完全分解的(Zr,Ta)固溶体。由于880 °C下扩散程度较差,组织分布不均匀且扩散层厚度小,存在部分未焊合区域,因此断口较为平整。900和920 °C接头断口表面可观察到大范围剪切韧窝出现,主要表现为塑性断裂。通过EDS点扫描结果发现900和920 °C断口组织类似,主要成分均为 $\alpha$ -Zr,同时伴有少量(Zr,Ta)固溶体,断口未见颗粒或夹杂等组织。此时断口处组织主要为针状组织 $\alpha$ -Zr和(Zr,Ta)固溶体,分布较为

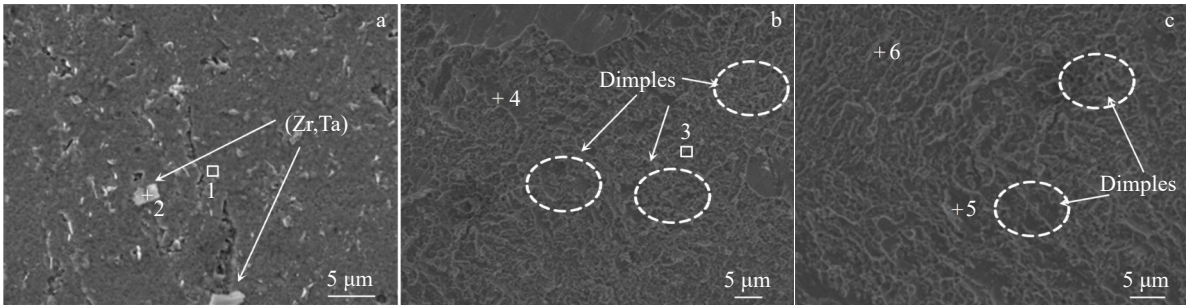


图7 不同温度下接头钎合金侧断口形貌图

Fig.7 Fracture morphologies on the Zr side of joints bonded under different temperatures: (a) 880 °C; (b) 900 °C; (c) 920 °C

表3 图7中各点的化学成分  
Table 3 Chemical composition of marked points in Fig.7 (at%)

| Point | Ta    | Zr    | Main phase            |
|-------|-------|-------|-----------------------|
| 1     | 6.19  | 93.81 | $\alpha$ -Zr          |
| 2     | 53.67 | 46.33 | Ta, $\alpha$ -Zr      |
| 3     | 6.19  | 93.81 | (Zr,Ta), $\alpha$ -Zr |
| 4     | 18.85 | 81.15 | $\alpha$ -Zr          |
| 5     | 4.77  | 95.23 | (Zr,Ta)               |
| 6     | 5.44  | 94.56 | $\alpha$ -Zr          |

均匀,接头强度也较高,Ta 含量低,主要集中于固溶体中,断口更靠近钽侧。

对比各接头钽侧断口 XRD 图谱(图8)可以发现,880 ℃接头断口表面  $\alpha$ -Zr 谱峰值较显著,(Zr,Ta)固溶体对应的谱峰较弱。随着温度升高(Zr,Ta)固溶体 XRD 衍射峰积分强度增大, $\alpha$ -Zr 衍射峰积分强度减小。印证了上述随温度升高针状组织  $\alpha$ -Zr 和 (Zr,Ta)分布更加均匀弥散的结果。因此扩散层中 I 区内靠近 II 区域过渡层部分为薄弱区域,应控制好扩散区的厚度,并通过调节温度来使组织分布均匀,保证薄弱区的相对强度。扩散层较薄容易出现未焊合现象,使强度下降;扩散层较厚容易使针状组织分散,造成接头力学性能下降。

3.5 腐蚀形貌观察

选取力学性能较好的 Zr/Ta 扩散连接接头进行腐蚀试验,900、920 ℃下获得的接头界面在保持 50 ℃恒温的腐蚀液中全浸腐蚀 7 天,腐蚀后的接头界面结构如图9所示:观察图9中腐蚀前、后的接头界面金相图可以发现,两种参数接头中均未出现腐蚀坑或扩散层腐蚀脱落等严重腐蚀现象,仅表面出现轻微腐蚀。相同腐蚀条件下 900 ℃扩散接头中的扩散层没有出现腐蚀开裂,仅母材表面被轻微腐蚀。920 ℃接头的母材表面腐蚀与 900 ℃接头类似,但扩散层界面出现细小裂纹。这是由于钽高温下相互扩散会形成化合物以及一些微量元素所形成的金属间化合物,这些组织成分不耐腐蚀,在全浸腐蚀后脱

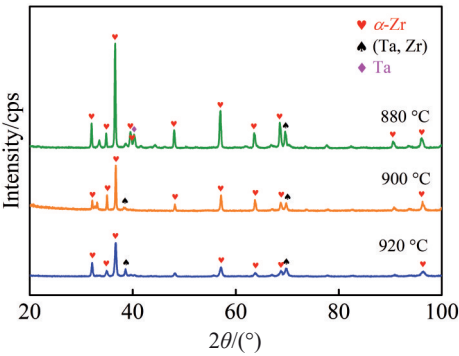


图8 不同温度下接头的钽侧断口 XRD 图谱  
Fig.8 XRD patterns of the Zr side fracture of joints bonded under different temperatures

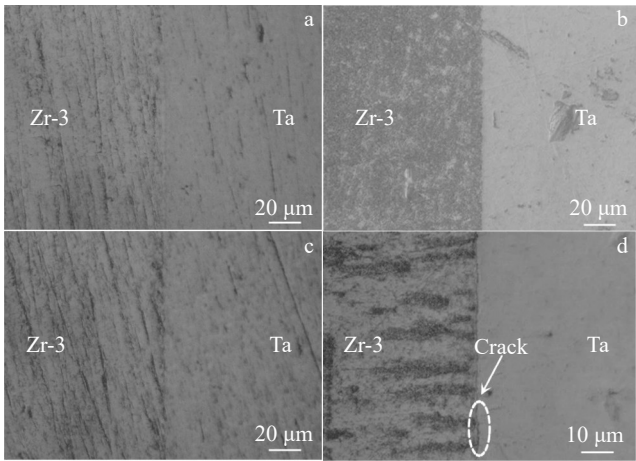


图9 900 和 920 ℃接头的原始形貌和全浸腐蚀后形貌  
Fig.9 Original morphologies (a, c) and fully immersed corroded morphologies (b, d) of the joints obtained under 900 ℃ (a–b) and 920 ℃ (c–d)

落导致扩散层处出现孔洞或者微裂纹等缺陷<sup>[12]</sup>。焊接接头耐腐蚀性能随温度升高而略有下降。因此 900 ℃温度下获得 Zr/Ta 扩散连接接头表现得更耐腐蚀。总体而言接头耐腐蚀性能均有较好表现。

为了进一步验证 900 和 920 ℃接头的耐腐蚀性能,采用电化学腐蚀方法对两种接头进行测试。由于 880 ℃接头本身强度与其他两个参数的接头相比焊接强度较弱,可预见到其耐蚀性较差,本工作主要针对强度较高的 900 和 920 ℃接头进行腐蚀性能测试。根据电化学理论,腐蚀电流密度越小,相应的腐蚀速率越小,则材料的耐腐蚀性越好;腐蚀电位越大,材料越难以发生腐蚀,耐腐蚀性越好。如表 4 可以发现 900 ℃接头的腐蚀电流比 920 ℃的更小,这可能是由于而 920 ℃焊接温度过高,导致接头内部热应力累积,引发界面微裂纹与晶粒粗化,接头强度有所下降(312 MPa),这些微裂纹直接破坏了钝化膜的连续性,形成腐蚀介质快速渗透的通道,加速溶解,导致腐蚀电流密度大幅下降,腐蚀电位更高。因此可以判断 900 ℃接头在硝酸溶液中具有更好的耐蚀性。

图 10 可以看到两种接头在阻抗谱测试得到的 Nyquist 图和 Bode 图,由 Nyquist 图可以看到,900 ℃接头相比 920 ℃接头容抗弧半径更大,说明其氧化产物耐腐蚀性更好,在 Bode 图中 900 ℃接头阻抗值振幅较大,说明氧化膜层更加稳定。因此综合来看 900 ℃接头耐蚀性更好。

表4 900 和 920 ℃接头极化曲线拟合参数  
Table 4 Fitting parameters of polarization curves for the joints welded at 900 and 920 ℃ for 30 min

| Joint                      | 900 ℃                    | 920 ℃                   |
|----------------------------|--------------------------|-------------------------|
| $I_{corr}/A \cdot cm^{-2}$ | $4.5491 \times 10^{-15}$ | $1.2012 \times 10^{-7}$ |
| $E_{corr}/V$               | 0.10284                  | 0.18801                 |

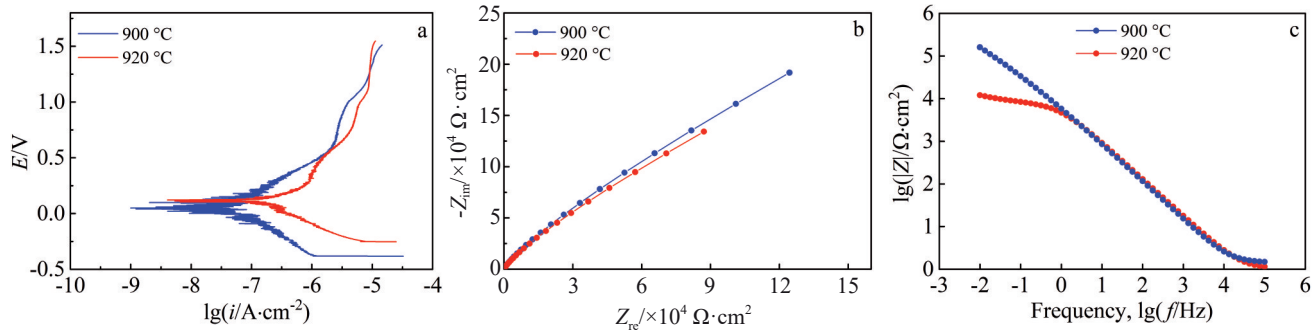


图 10 900 和 920 °C 接头的电化学测试结果

Fig.10 Electrochemical test results of the joints welded at 900 and 920 °C: (a) polarization curves; (b) Nyquist plots; (c) Bode plots

# 4 结论

1) 扩散连接温度显著影响 Zr-3/Ta 异质接头界面结合程度, 界面扩散层组织主要由  $\alpha$ -Zr 和钽锆固溶体组成。扩散层厚度随连接温度升高逐渐增加, 880、900 和 920 °C 连接温度下界面扩散层厚度分别为 3、7 和 10  $\mu\text{m}$ 。

2) 随着扩散连接温度升高, Zr-3/Ta 接头剪切强度先上升后下降。在 880 °C-30 min-10 MPa 条件下接头强度最低, 仅为 143 MPa。当连接温度升高至 900 °C, 接头强度最高为 385 MPa, 该接头界面扩散层中针状  $\alpha$ -Zr 稠密且分布均匀, 形成交错的网状结构。

3) 900 和 920 °C 下获得的 Zr-3/Ta 接头的耐腐蚀性能较好, 并且通过电化学腐蚀实验可以发现 900 °C 接头的耐腐蚀性更好。

## 参考文献 References

[1] Sun Taotao(孙涛涛), Ma Tianyang(马天洋), Tian Hang(田航) *et al. Management & Technology of SME*(中小企业管理与科技)[J], 2020(8): 176

[2] Shi H Q, Xu Y, Liang G X *et al. Journal of Non-Crystalline Solids*[J], 2025, 650: 123370

[3] Wei X, Xia L G, Liu Z H *et al. Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2023, 33(10): 3132

[4] Slobodyan M. *Journal of Manufacturing Processes*[J], 2022, 75: 928

[5] Hao Wumin(郝武民), Luo Yiming(罗一鸣), Yu Xiaoquan(于晓全) *et al. Welding & Joining*(焊接)[J], 2024(5): 21

[6] Zhao Ya(赵雅), Li Shixia(李世霞), Ye Weicai(冶维财) *et al. Welding & Joining*(焊接)[J], 2024(3): 59

[7] Mukherjee D, Panakkal J P. *Journal of Materials Science Letters*[J], 1995, 14(19): 1383

[8] Wu Dehui(吴德惠). *Nuclear Power Engineering*(核动力工程)[J], 1982(2): 59

[9] Liang H L, Luo N, Shen T *et al. Journal of Materials Research and Technology*[J], 2020, 9(2): 1539

[10] Li S W, Zu Y D, Du Y J *et al. Materials Characterization*[J], 2022, 194: 112359

[11] Yang X, Wang Y X, Yang Z W *et al. Journal of Alloys and Compounds*[J], 2025, 1035: 181545

[12] Wang Z M, Yang X, Wang J *et al. Crystals*[J], 2021, 11(11): 1437

[13] Yang X, Guo C X, Wang R P *et al. Materials Characterization*[J], 2024, 208: 113596

[14] Wang Na(王娜), Bai Pucun(白朴存), Hou Xiaohu(侯小虎) *et al. Journal of Inner Mongolia University of Science and Technology*(内蒙古科技大学学报)[J], 2010, 29(2): 161

[15] Liu Shihong(刘世宏), Xiao Weiwei(肖魏魏), Luo Biao(罗彪) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2024, 53(7): 1962

[16] Song Kuijing(宋奎晶), Wei Yong(韦勇), Zhang Mingyu(张铭雨) *et al. Electric Welding Machine*(电焊机)[J], 2024, 54(8): 36

[17] Wei S H, Li Y, Zhang R Q *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2025, 606: 155627

[18] Zhang Henghua(张恒华). *Heat Treatment*(热处理)[J], 2010, 25(1): 78

[19] Sharma G, Dwivedi D K, Sharma P. *Transactions of the Indian Institute of Metals*[J], 2025, 78(3): 78

[20] Li Qianru(李茜茹), Zhang Fan(张帆), Niu Shiyu(牛士玉) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2025, 54(12): 3105

[21] Peng Jiancai(彭建财), Sheng Zhongqi(盛钟琪), Li Cong(李聪). *Proceedings of the 2007 Academic Exchange Conference of the Nuclear Materials Branch of the Chinese Nuclear Society*(中国核学会核材料分会 2007 年度学术交流会议论文集)[C]. Jiangyou: China Nuclear Society Nuclear Materials Branch, 2007: 5

[22] Liu C C, Zhang L M, Liu Z *et al. Corrosion Science*[J], 2025, 246: 112729

[23] Nishio S. *Corrosion Science*[J], 2012, 65: 567

[24] Wang Ruiping(王瑞萍), Xiao Zonglin(肖宗林), Yang Xu(杨旭) *et al. Transactions of the China Welding Institution*(焊接学报)[J], 2024, 45(8): 33

[25] Yang X, Guo C X, Wang R P *et al. Materials Characterization*[J], 2024, 208: 113596

[26] Wang Jun(王俊). *Investigation of the Diffusion Behaviour and Mechanical Properties in the Partial Systems Zr-Nb-Ta-Hf*(Zr-

- Nb-Ta-Hf 系中部分体系的扩散行为及力学性能的研究)[D]. Nanning: Guangxi University, 2022
- [27] Liu F L, Zhang H Y, Yu Z Q *et al.* *Calphad*[J], 2025, 91: 102890
- [28] Ren Rui(任 睿). *Study on Hall-Petch Relationship and Deformation Mechanism of Pure Mg at Room Temperature*(纯镁 Hall-Petch 关系与室温变形机制研究)[D]. Taiyuan: Taiyuan University of Technology, 2022
- [29] Zhou Jing(周 敬), He Qing(何 青), Zou Bensan(邹本三) *et al.* *Science Bulletin*(科学通报)[J], 1966, 17(11): 497

## Effect of Bonding Temperature on Interfacial Microstructure and Properties of Zr/Ta Diffusion Bonded Joints

Zhao Zicheng<sup>1</sup>, Gao Yu<sup>2</sup>, Liu Zhongliang<sup>2</sup>, Hu Xiwen<sup>2</sup>, Li Qianru<sup>1</sup>, Niu Shiyu<sup>1</sup>, Yang Zhenwen<sup>1</sup>, Wang Ying<sup>1</sup>

(1. Tianjin Key Laboratory of Advanced Joining Technology, School of Materials Science and Engineering,

Tianjin University, Tianjin 300350, China)

(2. China Nuclear Power Engineering Co., Ltd, Beijing 100840, China)

**Abstract:** Zirconium alloys have garnered significant attention and widespread application in the nuclear industry due to their exceptional corrosion resistance and low thermal neutron absorption cross-section, particularly in dissolver equipment for highly corrosive environments. This study investigated the diffusion bonding interface microstructure between Zr-3 alloy and refractory metal tantalum as well as their mechanical properties. The effect of diffusion bonding temperature on the shear strength of zirconium/tantalum joints was examined. Additionally, the interface structure and fracture surface morphology of the joints were analyzed, and a preliminary study on the corrosion resistance of the joint was conducted. Results show that the typical interface structure of the joint is  $\text{Zr}/\alpha\text{-Zr}+\beta\text{-(Zr,Ta)}$  solid solution/Ta, with the thickness of the diffusion layer increasing gradually as the bonding temperature rises. The shear strength of the joint initially increases and subsequently decreases with rising temperature. Under the bonding conditions of 900 °C-30 min-10 MPa, the joint strength reaches its maximum value of 385 MPa, with the fracture surface exhibiting mixed fracture characteristics. Furthermore, the zirconium/tantalum diffusion bonding joint demonstrates excellent corrosion resistance.

**Key words:** diffusion bonding; Zr-3 alloy; Ta; shear strength; corrosion

---

Corresponding author: Wang Ying, Ph. D., Professor, Tianjin Key Laboratory of Advanced Joining Technology, School of Materials Science and Engineering, Tianjin University, Tianjin 300350, P. R. China, E-mail: wangycl@tju.edu.cn