

金属铪真空电子束焊接工艺及组织性能研究

杨灿湘, 张超, 周猛兵, 王军, 李博, 白力文, 陈高詹, 魏连峰

(中国核动力研究设计院第四研究所, 四川 成都 610213)

摘要: 采用真空电子束焊接工艺焊接金属铪板材, 研究了金属铪焊后的微观组织和力学性能。结果表明, 金属铪在焊接电压为 60 kV、焊接束流为 36 mA/40 mA、焊接速度为 1000 mm/min 的工艺条件下, 可以实现金属铪的稳定焊接, 获得无内部缺陷的焊接接头。金属铪组织为晶粒大小一致、晶界清晰的等轴晶组织, 晶粒度达到 10 级。经真空电子束焊接后, 其焊缝区的晶粒明显长大, 表现为不均匀分布的、粗大的树枝晶组织, 并存在少量的退火孪晶组织。由于焊缝区域晶粒粗化及树枝晶的形成, 金属铪真空电子束焊接接头的拉伸性能显著低于母材, 断后伸长率仅约为母材的 50%。同时, 金属铪焊缝拉伸断口形貌呈现光滑的解理台阶、撕裂痕、裂纹等解理断裂特征, 并伴有河流状花样, 为脆性断裂。

关键词: 金属铪; 真空电子束焊接; 微观组织; 力学性能

中图分类号: TG146.4⁺14

文献标识码: A

文章编号: 1009-9964(2023)05-030-05

Study on Welding Process and Microstructure and Properties of Vacuum Electron Beam Welding of Hafnium

Yang Canxiang, Zhang Chao, Zhou Mengbing, Wang Jun, Li Bo, Bai Liwen, Chen Gaozhan, Wei Lianfeng

(Fourth Institute of Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610213, China)

Abstract: The microstructure and mechanical properties of hafnium plate welded by vacuum electron beam welding were studied. The results indicate that stable welding of metal hafnium and welding joints without any internal defects can be achieved under the process conditions of welding voltage of 60 kV, welding beam current of 36 mA/40 mA, and welding speed of 1000 mm/min. The microstructure of hafnium is equiaxed grain structure with uniform grain size and clear grain boundaries. And the grain size reaches 10 grades. After vacuum electron beam welding, the grain size of the weld zone has grown obviously, showing uneven distribution and coarse dendrite structure, and there is a small amount of annealing twin structure. Due to the formation of dendrite and grain coarsening in the weld zone, the tensile properties of vacuum electron beam welding joint of hafnium are significantly lower than that of the base metal. The elongation after fracture is only about 50% of the base metal. At the same time, the tensile fracture morphology of the weld shows obviously cleavage fracture characteristics such as smooth cleavage steps, tear marks, cracks and river-like pattern, which are brittle fractures.

Keywords: hafnium; vacuum electron beam welding; microstructure; mechanical property

金属铪是一种重要的战略材料^[1-2]。金属铪的中子吸收截面高达 115 barn ($1 \text{ barn} = 1 \times 10^{-28} \text{ m}^2$), 并且其 6 种同位素都具有很高的中子吸收效率, 在长时间辐照条件下使用, 其物理性能未表现出明显降低的趋势^[3]。因此, 金属铪是一种非常理想的中子吸收体材料, 可作为核动力装置中控制棒、反应堆中保护涂层和通量

衰减器等^[4]。金属铪为密排六方 (hcp) 结构, 其滑移系相对于立方晶系较少, 较难发生塑性变形。此外, hcp 结构对称度较低, 相互独立的滑移系较少, 各个晶面上的原子密排程度随轴比 c/a 的变化而变化, 金属铪的轴比为 1.58^[5], 小于 hcp 结构的理想轴比 (1.633), 因此除了可以发生基面滑移外, 也有可能发生柱面及锥面滑移, 从而发生孪晶变形^[6]。

金属铪具有较好的耐腐蚀性能, 在热水和水蒸气

收稿日期: 2023-06-14

通信作者: 张超 (1993—), 男, 助理研究员。

混合物中的耐腐蚀性高于钛、锆。同时, 金属钪具有高的抗氧化性、良好的导电导热性和较低电子逸出功^[7-10], 被认为是现阶段反应堆用控制棒的最佳候选材料之一。据相关报道^[11], 美国海军核动力航空母舰反应堆、美国橡树岭实验室反应堆、俄罗斯反应堆、德国 FRM II 反应堆都采用金属钪作为中子吸收体。然而, 金属钪在高温条件下具有较强的 H、O、N 吸附效应, 在空气环境中焊接, 焊缝容易吸附 H、O、N 等杂质元素, 形成气孔缺陷, 使焊缝的耐腐蚀性能显著降低。因此, 选择合适的焊接方式对于保证金属钪的性能十分重要。国内学者陶海燕等^[12]研究了薄壁金属钪管材电子束焊接几何缺陷形成机理和控制工艺, 并利用电子束焊接实现了薄壁金属钪管材的良好连接。然而, 目前鲜有关于厚度较大的高纯金属钪板材连接工艺的研究, 探索大厚度金属钪材料连接工艺及其组织性能可以有效促进大厚度金属钪材料在工程中的应用, 具有十分重要的意义。

真空电子束焊接是一种高效率、高能量密度的熔化焊接方法, 具有焊接冶金质量好、焊缝熔深大、热影响区窄、焊接速度快、焊件变形小以及焊接保护效果好等优点^[13], 是一种金属材料的理想焊接方法。为此, 开展了厚度为 5 mm 的金属钪板材真空电子束焊接工艺研究, 分析了焊缝微观组织、力学性能及拉伸断裂机制, 丰富了金属钪焊接技术相关基础研究的数据, 以期对反应堆用钪控制棒的制备和性能研究提供参考。

1 实验

实验材料为采用热轧 + 冷轧工艺制备的 $\phi 60$ mm 金属钪棒坯, 其化学成分如表 1 所示。金属钪棒坯在 800 °C 保温 1.5 h 后, 采用横列式热轧机经过 11 道次轧制成厚度为 13 mm 的板坯。对板坯除油清洗, 然后采用冷轧工艺得到厚度为 5 mm 的金属钪板材。在 740 °C 对板材进行再结晶退火处理。

表 1 金属钪棒坯化学成分 (w%)

Table 1 Chemical composition of hafnium rod

| Hf | Zr | C | H | O | N |
|------|-----|-------|--------|-------|-------|
| Bal. | 1.0 | 0.003 | 0.0002 | 0.005 | 0.001 |

从退火后的金属钪板材上切取尺寸为 100 mm × 62 mm × 5 mm 的焊接试样。焊接设备选用 EBOCAM 型真空电子束焊机, 采用双面焊接工艺, 在全聚焦状态下垂直于试板表面进行焊接, 主要焊接工艺参数为: 焊接电压 60 kV, 正面焊接束流 36 mA, 反面焊接束

流 40 mA, 焊接速度 1000 mm/min, 焊接室真空度 5.5×10^{-2} Pa。对焊接后的试样进行 600 °C/5 h 真空退火处理。

从退火后的金属钪焊接试件上切取尺寸为 124 mm × 24 mm × 5 mm (平行段宽度为 12.5 mm) 的拉伸试样。为了与焊接前的拉伸性能进行对比, 从金属钪母材上切取同样尺寸的拉伸试样。利用万能材料试验机进行室温和高温拉伸性能测试, 取 3 个平行试样的平均值作为实验结果。沿垂直于焊缝方向切取焊接接头的横截面金相试样 (尺寸为 10 mm × 5 mm × 5 mm), 依次用 300#、600#、800#、1000# 及 1500# 砂纸进行粗磨、细磨, 然后进行电解抛光处理。采用 Axio Observer 7M 型光学显微镜观察金属钪焊接接头的微观组织。利用 FEI Nano SEM400 场发射扫描电子显微镜 (SEM) 观察拉伸试样的断口形貌。

2 结果与分析

2.1 真空电子束焊缝成形情况

图 1 为金属钪真空电子束焊缝的宏观形貌。从图 1 可以看出, 在焊接电压为 60 kV、焊接束流为 36 mA/40 mA、焊接速度为 1000 mm/min 的双面焊接工艺条件下, 可以实现金属钪的稳定焊接, 所形成的焊缝表面饱满、平整、光滑, 且焊缝表面呈现银白色。由此可见, 真空电子束焊接工艺可以较好的实现金属钪焊接过程的空气隔绝保护。

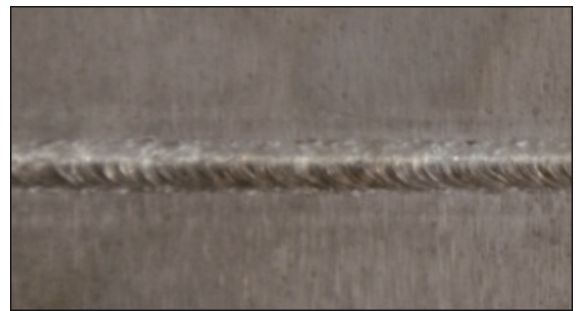


图 1 金属钪真空电子束焊缝宏观形貌

Fig.1 Macro-morphology of vacuum electron beam welding of hafnium

为了探索金属钪真空电子束焊缝内部缺陷情况, 沿垂直于焊缝方向切取焊接接头的横截面金相试样, 并通过光学显微镜观察焊接接头质量及缺陷分布特征。图 2 为金属钪真空电子束焊缝的横截面形貌。根据焊接接头的微观组织形态差异, 可以将其划分为焊缝区 (welding nugget zone, WNZ)、熔合区 (fusion zone, FZ)、热影响区 (heat affected zone, HAZ) 和母材 (base material, BM)。从图 2 可以看出, 在焊接电

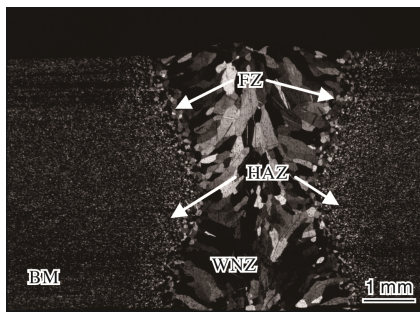


图2 金属钪真空电子束焊缝的横截面形貌

Fig.2 Cross-sectional morphology of vacuum electron beam welding of hafnium

压为 60 kV、焊接束流为 36 mA/40 mA、焊接速度为 1000 mm/min 的双面焊接工艺条件下可以获得无缺陷的焊接接头。

2.2 微观组织

图 3 为金属钪母材及其真空电子束焊缝区的微观组织。从图 3a 可以看出，金属钪板材经过热轧 + 冷轧 + 再结晶退火后，其组织为晶粒大小一致、晶界清晰的等轴晶组织，晶粒度达到 10 级。此外，尽管金属钪经过了 740 °C 退火处理，微观组织中仍存在少量的孪晶组织。

从图 3b 可以看出，焊缝区域晶粒均显著长大，表现为不均匀的树枝状晶特征，晶粒度为 2 级左右。虽然电子束焊接能量密度较大，熔池中心温度高，但电

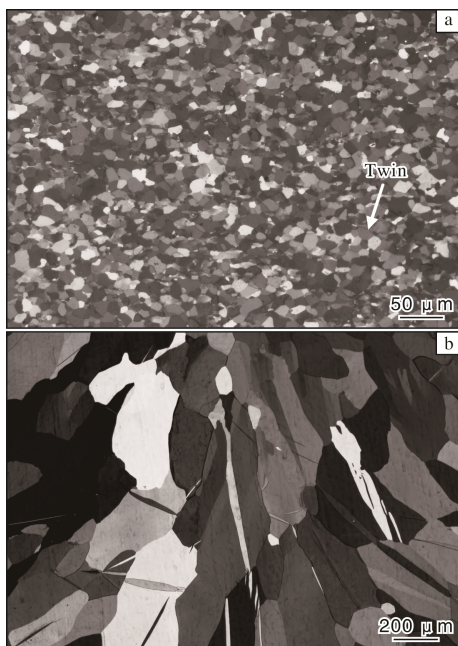


图3 金属钪母材及其真空电子束焊缝区的显微组织

Fig.3 Microstructures of vacuum electron beam welding of hafnium: (a) base metal; (b) welding nugget zone

子束停留时间短，焊后冷却速度较快，因此在熔合线附近会形成较大的温度梯度。同时，金属钪中合金元素含量小，阻碍晶粒长大、晶界移动的质点少，由焊缝两侧生长的晶粒在焊缝中心处相遇，形成不均匀的、粗大的树枝状晶微观组织。

由于焊缝区域内晶粒长大，在图 3b 中还可以观察到明显的孪晶组织，但数量较少。孪晶组织主要表现为整体贯穿晶粒和未完全贯穿晶粒 2 种形态，这主要与晶界相关。退火过程中当晶粒通过晶界移动生长时，原子层在晶界交叉处的堆垛顺序偶然堆错，会出现一共格的孪晶界并随之在晶界角处形成退火孪晶^[14]。金属钪在焊接热循环作用下，焊缝区域相当于经历了一次高温（峰值温度高于金属钪熔点温度）短时真空退火处理，晶粒发生明显长大，同时形成大量的孪晶组织。郑刚等^[15]研究发现，金属钪中孪晶组织在 600~760 °C 真空退火后逐渐消失。本实验中金属钪焊缝经 600 °C 真空退火处理后，焊缝区部分孪晶组织消失，因此仅可以观察到少量的孪晶组织。

2.3 力学性能

图 4 为金属钪母材及其真空电子束焊接接头的室温和高温拉伸性能。由图 4 可知，金属钪母材在室温下的抗拉强度和断后伸长率平均值分别为 481 MPa、14.75%，在 350 °C 下的抗拉强度和断后伸长率平均值

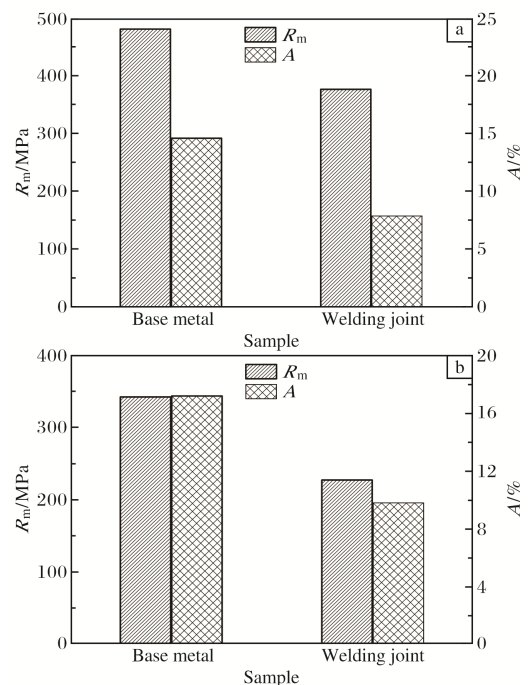


图4 金属钪母材及其电子束焊接接头在室温和高温下的拉伸性能

Fig.4 Tensile properties of hafnium base metal and its vacuum electron beam welding joint: (a) room temperature; (b) 350 °C

分别为 342 MPa、17.2%。与金属铪母材相比, 真空电子束焊接接头的拉伸性能显著降低, 室温和高温抗拉强度分别为 378、227 MPa, 断后伸长率降低至母材的约 50%, 分别为 8.5%和 9.3%, 焊缝拉伸断裂均发生在焊缝区域。分析认为, 金属铪中形核质点少, 因而对晶界运动的阻碍较少, 在焊接热循环作用下, 促进焊缝区域晶粒显著长大, 进而导致焊接接头的抗拉强度和断后伸长率明显降低。

2.4 拉伸断口形貌

图 5 为金属铪母材及其电子束焊接接头的室温拉

伸和高温拉伸断口形貌。金属铪母材在室温下的拉伸断口除了存在大小不同、深度不同的韧窝以外, 局部位置还存在少量的撕裂痕和解理面(图 5a), 因此断裂形式为准解理断裂; 350 °C下的断口特征以韧窝为主(图 5b), 说明金属铪母材在高温下为韧性断裂。金属铪真空电子束焊接接头在室温和 350 °C下的断口形貌均表现为光滑的解理台阶特征, 并且可以观察到明显的撕裂痕和深度较大的裂纹, 断口表面伴有河流状花样(图 5c、5d), 即说明金属铪真空电子束焊接接头拉伸断裂形式为脆性断裂。

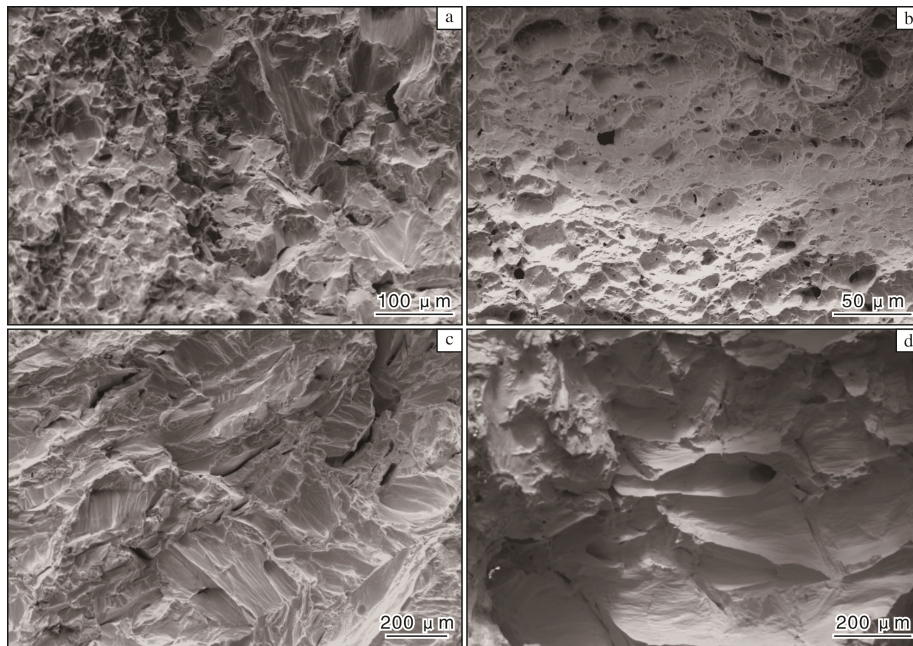


图 5 金属铪母材及其电子束焊接接头的拉伸断口形貌

Fig.5 Tensile fracture morphologies of hafnium base metal and its vacuum electron beam welding joint: (a) base metal at room temperature; (b) base metal at 350 °C; (c) welding joint at room temperature; (d) welding joint at 350 °C

由于金属铪电子束焊缝区形成粗大的树枝状晶, 并且在焊接高温作用下母材中的第二相发生完全溶解, 导致拉伸过程中协调变形能力变弱, 宏观上表现为断后伸长率显著降低, 微观上表现为拉伸断口具有典型的以光滑解理面为主的解理断裂特征。因此, 金属铪电子束焊接接头的延展性显著降低。

3 结 论

(1) 金属铪在焊接电压为 60 kV、焊接电流为 36 mA/40 mA、焊接速度为 1000 mm/min 的双面焊接工艺条件下, 可以实现稳定焊接, 获得无内部缺陷的焊接接头, 且焊缝表面饱满、平整、光滑。

(2) 金属铪母材为晶粒大小一致、晶界清晰的等轴晶组织, 其晶粒度达到 10 级; 经真空电子束焊接后, 焊缝区呈分布不均匀的树枝晶组织特征, 晶粒发生明

显粗化, 并且存在少量的退火孪晶组织。

(3) 由于金属铪电子束焊缝区生成大量粗大的树枝晶组织, 导致金属铪焊接接头在室温和高温下的拉伸性能显著降低, 相同试验条件下, 焊缝的断后伸长率降低至母材的约 50%。

(4) 金属铪母材室温拉伸断裂形式为准解理断裂, 而在 350 °C下的拉伸断裂形式为韧性断裂。金属铪真空电子束焊缝在室温和 350 °C下的拉伸断裂形式均为脆性断裂, 断口处形成了光滑的解理台阶, 存在明显的撕裂痕和裂纹, 同时断口表面伴有河流状花样。

参考文献 References

- [1] 李中奎, 刘建章. 中国核用铪铪材料的现状和未来发展[J]. 稀有金属快报, 2004, 23(5): 10-14.

- [2] 张明贤. 钛、锆、铪及其化合物在光学镀膜技术中的应用[J]. 钛工业进展, 1996(2): 29-32.
- [3] Béchade J L, Parmentier P. Fabrication and metallurgical properties of hafnium alloys for control rods [C]//Conference of Control Assembly Materials for Water Reactors: Experience, Performance and Perspectives. Vienna: IAEA, 1998: 152-165.
- [4] 蔡文博, 武宇, 姚修楠, 等. 退火温度对铪棒组织与性能的影响[J]. 钛工业进展, 2020, 37(5): 31-35.
- [5] 谭晓礼, 顾海澄. hcp 金属塑性变形与疲劳机理[J]. 材料研究学报, 1996, 10(6): 569-579.
- [6] 肖林. 密排六方金属的塑性变形[J]. 稀有金属材料与工程, 1995, 24(6): 21-28.
- [7] Shikov A K, Bocharov O V, Arzhakova V M, et al. Use of hafnium in control elements of nuclear reactors and power units[J]. Metal Science and Heat Treatment, 2003, 45(7/8): 300-303.
- [8] 柳旭, 王力军, 陈松, 等. 金属铪的制备方法研究进展[J]. 稀有金属, 2013, 37(2): 312-319.
- [9] 温亚捷. 金属铪的纯度对其显微组织及力学性能的影响研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工程大学, 2019.
- [10] 蔡文博, 姚修楠, 武宇, 等. 加工方式对铪棒组织与性能的影响[J]. 钛工业进展, 2020, 37(3): 29-32.
- [11] 蔡文博, 武宇, 姚修楠, 等. 退火温度对铪棒组织及耐腐蚀性能的影响[J]. 稀有金属材料与工程, 2021, 50(4): 1455-1461.
- [12] 陶海燕, 陈路, 王世忠, 等. 金属铪电子束焊接几何缺陷控制工艺[J]. 焊接技术, 2018, 47(4): 150-153.
- [13] 王廷, 张峰, 李宁, 等. Ti60 钛合金/GH3128 高温合金电子束焊接接头脆裂原因分析[J]. 焊接学报, 2017, 38(12): 19-22.
- [14] 杨钢, 孙利军, 张丽娜, 等. 变形孪晶的消失与退火孪晶的形成机制[J]. 钢铁研究学报, 2009, 21(2): 39-43.
- [15] 郑刚, 徐广胜, 王凯旋, 等. 真空退火温度对冷加工态铪棒组织和力学性能的影响[J]. 钛工业进展, 2016, 33(2): 42-44.

行业动态

2022 年日本各类钛加工材出货量统计

| 类别 | 出货量/t | 类别 | 出货量/t | 类别 | 出货量/t |
|-----|-------|-----|-------|----|--------|
| 厚板 | 837 | 焊管 | 34 | 锻件 | 541 |
| 热轧板 | 517 | 无缝管 | 2 | 铸件 | 0 |
| 冷轧板 | 3985 | 棒材 | 885 | 其他 | 16 |
| 带材 | 6902 | 丝材 | 484 | 合计 | 14 203 |

2022 年日本钛加工材在各个领域用量统计

| 应用领域 | 用量/t | 应用领域 | 用量/t | 应用领域 | 用量/t |
|-------|------|-------|------|-------|------|
| 化工 | 62 | 汽车 | 378 | 生活消费品 | 577 |
| 电力 | 42 | 船舶、海洋 | 27 | 医疗 | 156 |
| 电解 | 1437 | 能源 | 0 | 销售业 | 1148 |
| 板式换热器 | 610 | 建筑、土木 | 22 | 其他 | 206 |
| 航空 | 438 | 体育用品 | 195 | 合计 | 5298 |

王运锋摘自《チタン》