

● 试验与研究 ●

核电安全端 Inconel 690 合金堆焊层界面 微观组织及力学性能研究

郭彦兵¹, 庞亚龙^{1,3}, 鲁艳红², 张旺¹

(1. 上海电机学院 材料学院, 上海 201306; 2. 上海电气集团核电设备有限公司, 上海 201306; 3. 兰州理工大学 材料科学与工程学院, 甘肃 兰州 730050)

摘要: Inconel690 镍基合金因其优异的抗晶间腐蚀能力而常应用于压水堆核电蒸汽发生器的管板堆焊隔离层。采用热丝 TIG 堆焊的方法在核电用 SA508Gr.3Cl.2 低合金钢表面堆焊 Inconel 690 镍基合金隔离层, 并在焊后进行等温热处理以消除残余应力。采用 OM、SEM、XRD 对堆焊层和基体金属进行了组织表征, 并对堆焊层和母材进行冲击韧性、硬度及拉伸性能进行测试和分析。研究表明, 堆焊层组织在室温下的抗拉强度达到 541.4 MPa, 断后伸长率达到 39.89%, 基体低碳钢的抗拉强度为 687.3 MPa, 伸长率为 20.8%。通过显微硬度测试得出堆焊层奥氏体组织平均硬度为 140.8 HV, 低于母材的 159.5 HV。Inconel690 堆焊层晶界附近析出的 $M_{23}C_6$ 、NbC 以及 TiC 等碳化物相对晶界产生钉扎作用, 其在界面上的分布状态对提升堆焊层的高温力学性能和服役安全具有重要意义。

关键词: Inconel 690 镍基合金; 堆焊层; 微观组织; 力学性能**DOI:** 10.14158/j.cnki.1001-3814.20193401

中图分类号: TG455

文献标识码: A

文章编号: 1001-3814(2020)11-0006-05

Study on Microstructure and Mechanical Properties of Inconel 690 Alloy Surfacing Layer of Nuclear Power Safe-End

GUO Yanbing¹, PANG Yalong^{1,3}, LU Yanhong², ZHANG Wang¹

(1. School of Materials, Shanghai Dianji University, Shanghai 201306, China; 2. Shanghai Electric Group Nuclear Power Equipment Co., Ltd., Shanghai 201306, China; 3. School of Materials and Engineering, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China)

Abstract: Inconel 690 nickel-based alloy is often used for the tube sheet isolated layer of PWR (pressurized water reactor) nuclear power steam generators due to its excellent intergranular corrosion resistance. The hot wire surfacing method was used to overlay the Inconel 690 nickel-based alloy insulation layer on the surface of SA508Gr.3Cl.2 low-alloy steel for nuclear power, and an isothermal heat treatment was used to eliminate residual stress after welding. The microstructure of the cladding and the base metal were characterized by OM, SEM, XRD, and the impact toughness, hardness and tensile properties of the surfacing layer were tested and analyzed. The results show that the tensile strength of the surfacing layer is 541.4 MPa at room temperature and the elongation after breaking is 39.89%. The tensile strength of the base low carbon steel is 687.3 MPa and the elongation is 20.8%. The microhardness test shows that the average hardness of the austenite microstructure of the surfacing layer is 140.8 HV, which is lower than 159.5 HV of the base material. Particles such as $M_{23}C_6$, NbC, TiC, etc. precipitated near the boundary of the surfacing layer are of great significance to improve the mechanical properties and service safety of the surfacing layer.

Key words: Inconel 690 nickel-based alloy; surfacing layer; microstructure; mechanical properties

核电是我国在新世纪最有发展潜力的清洁能源, 而随着我国核工业技术的飞速发展, 核电相关的

制造工艺, 特别是核电相关压力容器的焊接制造技术蓬勃发展^[1-2]。Inconel 690 镍基合金因具有优异的抗应力腐蚀 (SCC) 开裂性能而广泛应用于核工业^[3], 特别是在我国广泛发展和应用的压水堆核电蒸汽发生器^[3-6]。但 Inconel 690 镍基合金材料焊接时 Ni 元素与杂质元素产生低熔点共晶, 致使热裂纹产生, 且熔池粘度较高容易产生未熔合焊接缺陷^[7], 而

收稿日期: 2019-11-28

基金项目: 国家自然科学基金面上资助项目 (51975346)

作者简介: 郭彦兵 (1983-), 男, 河南扶沟人, 讲师, 博士, 主要研究方向: 异种材料焊接与激光表面改性; 电话: 021-38226163;

E-mail: yanbing1984@126.com

焊前预热和焊后热处理有利于减少焊接缺陷,降低堆焊过程中的应力累积,有助于提高材料的塑性和韧性,延长构件服役寿命^[8-10]。关于 Inconel690 镍基合金堆焊层焊后热处理对于堆焊层及母材的组织及力学性能的影响报道较少。因此,本文采用核电用 SA508Gr.3Cl.2 低合金钢板为基体材料和 Inconel690 焊丝进行热丝氩弧堆焊,并进行焊前预热和焊后热处理,对热处理后的堆焊层、母材的组织及力学性能进行分析。

表 1 基体材料和焊丝的化学成分(质量分数,%)
Tab.1 Chemical composition of base material and welding wire (wt%)

名称	C	Si	Mn	Cr	Mo	Al	Nb	Cu	Ni	Fe
SA508Gr.3Cl.2	0.21	0.18	1.4	0.15	0.94	0.019	0.001	0.05	0.97	余量
ERNiCrFe-7	<0.03	0.2	0.9	30	-	0.5	0.01	-	余量	9

1.2 焊接及热处理试验

堆焊试验选用的焊机为 SAF-DIGI WAVE400, 保护气体选用 99.999%Ar, 热丝电流为 60~80 A, 焊接电压为 14~18 V, 焊接速度为 90~130 mm/min, 送丝速度为 4000~4800 mm/min, 焊丝直径为 1.2 mm。焊前预热温度为 200℃, 镍基合金氩弧堆焊的位置为水平堆焊, 层间温度不超过 200℃, 焊接过程中保持预热温度, 堆焊总厚度≥20 mm。对堆焊后的试样在 610℃ 保温 4.5 h, 进行焊后热处理, 见图 1, 其中在 350℃ 以上降温速率不超过 55℃/h, 从而起到消除残余应力的作用, 降到 350℃ 以下, 从热处理炉中取出, 在空气中自然冷却至室温。

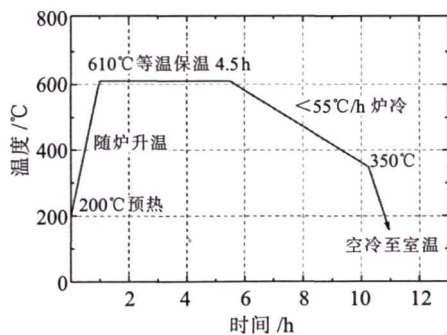


图 1 焊后热处理工艺

Fig.1 Post weld heat treatment process

1.3 试验方法

采用线切割的方式从堆焊层中切出金相试样, 磨抛后采用 5 g FeCl₃+25 mL HCl+50 mL H₂O 腐蚀液进行腐蚀, 腐蚀时间 15 s。使用 Leica DFC450 光学显微镜和 Hitachi-3400N 型扫描电子显微镜 (SEM) 对堆焊层进行微观组织对比观察分析, 使用能谱

1 试验材料及方法

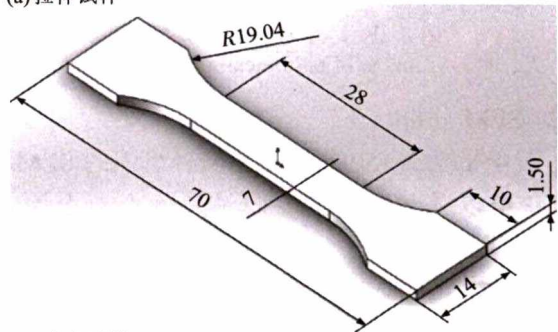
1.1 试验材料

本文选用核电用低合金钢 SA508Gr.3Cl.2 为基体材料, 尺寸为 100 mm×300 mm×400 mm; 选用 Inconel690 镍基合金焊丝(牌号为 ERNiCrFe-7)进行热丝堆焊。低合金钢 SA508Gr.3Cl.2 和焊丝 ERNiCrFe-7 的化学成分如表 1 所示。

(EDS)分析组织成分,使用 Bruker D8 Advance X 衍射仪分析堆焊层的物相。

对母材-堆焊层使用 HXD-1000TMTC/LCD 数字式显微硬度计进行显微硬度测试。按照 GB/T229-2007 在垂直于焊接方向取冲击试样, 其中缺口轴线距离熔合线以下约 0.5 mm, 冲击试验采用 Zwick-PIT452C-1 试验机。依据国标 GB/T2651-2008, 在堆焊层上取拉伸试样, 并在 Zwick Z100 万能材料试验机上进行拉伸测试。冲击和拉伸试样尺寸如图 2 所示。

(a) 拉伸试样



(b) 冲击试样

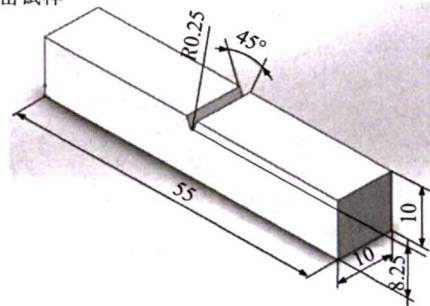


图 2 拉伸试样和冲击试样尺寸(mm)

Fig.2 Sizes of tensile specimen and impact specimen (mm)

2 试验结果及分析

2.1 堆焊层及其界面的组织演变分析

2.1.1 光学显微组织

图3是堆焊层 OM 宏观组织。堆焊层界面两侧的组织呈现出明显不同的组织形貌,如图3(a)所示。堆焊层晶粒粗大,呈现出明显的树枝晶生长形貌,如图3(b)所示。生长方向近似垂直于界面,而层间晶粒则呈现处沿前一层晶粒生长方向外延生长的趋势,如图3(c)所示。粗大的树枝晶内部分布着尺寸较小的亚晶粒,如图3(d)所示,其生长取向与树枝晶一致,同时由于焊接熔池的快速凝固,亚晶粒来不及长大,从而得到存在于树枝晶内部的细小亚晶粒。

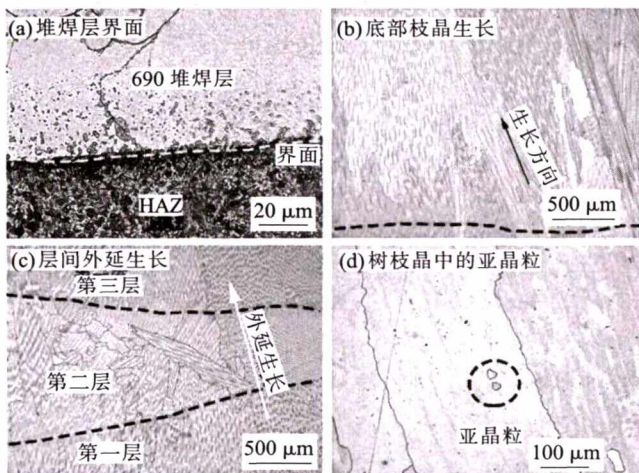
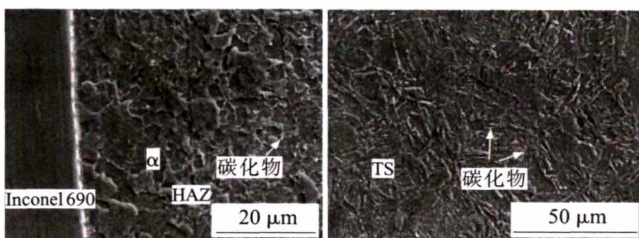


图3 基体-堆焊层的 OM 图像

Fig.3 OM image of base metal and surfacing layer

2.1.2 SEM 分析

图4(a)为 SA508Gr.3Cl.2 母材组织的 SEM 图,从图中可以看出基体组织细小均匀。低合金钢原始状态为贝氏体基体中分布 M-A 组元及析出的碳化物,SA508Gr.3Cl.2 靠近堆焊层界面附近的 HAZ 组织在焊接热循环作用下而升高至相转变温度 A_{c3} 线



(a)母材

(b)母材与堆焊层界面

图4 母材及其与堆焊层界面的 SEM 图像

Fig.4 SEM images of base metal and between base metal and surfacing layer

以上,在之后的冷却过程中转变为马氏体组织^[11-12]。随后在焊后的热处理过程中,经历高温回火转变为细小的回火索氏体组织(TS)和极为细小的碳化物组织,如图4(b)所示。焊后热处理不但消除了焊接应力,而且细化了基材的热影响区组织,优化了其组织和力学性能。

图5为堆焊层 SEM 形貌,可以观察到晶内和晶界处普遍存在着含有白色和黑色的颗粒析出相(图5圆圈中部分)。这些相往往在等温保温过程从基体中析出,起到钉扎位错或者晶界的作用,从而对材料产生强化作用。而对于 Inconel 690 镍基合金焊接快速熔凝的非平衡组织,其晶界处易析出富 Cr 的 $M_{23}C_6$ 富 Nb 的 NbC,此外,因元素微观偏析,高温回火及前一道次对后道堆焊层的热处理作用也会导致晶粒内部析出碳化物颗粒相^[13-14]。碳化物硬质颗粒相的存在对阻碍位错运动导致的第二相强化作用以及钉扎晶界造成的晶界强化效应有利于提高 Inconel 690 镍基堆焊层高温环境服役性能。

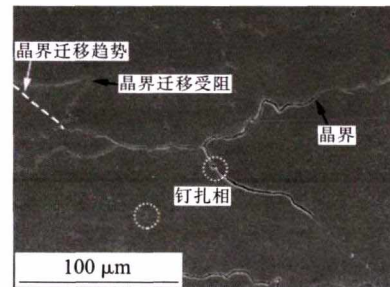


图5 堆焊层 SEM 组织形貌

Fig.5 SEM structure morphology of deposited metal

2.1.3 EDS 分析

为了证实碳化物相的种类及其元素构成,进一步采用能谱仪(EDS)面扫描分析对 Inconel 690 堆焊层晶界附近的组织进行了元素分析,如图6所示。由图可知,在晶界和枝晶间区域的白色析出相上,Nb 和 Ti 元素存在正偏析。说明晶界上晶内存在富 Nb、富 Ti 析出相,而晶界上并非所有位置都是富 Nb 相,如白色连续线状析出相的上端并没有 Nb 的富集,说明晶界和枝晶间的富 Nb 相和细线状白色析出相为两种不同的相。

为了进一步阐明枝晶间富 Nb 相和晶界位置连续分布的线状析出相的成分和可能的相结构,采用 EDS 点扫描分别对两种典型相的成分进行分析,如图7所示。由图7可知,分布于晶内和枝晶间区域附近的白色絮状析出相主要由 C、Nb、Ti、Cr、Fe、Ni 等

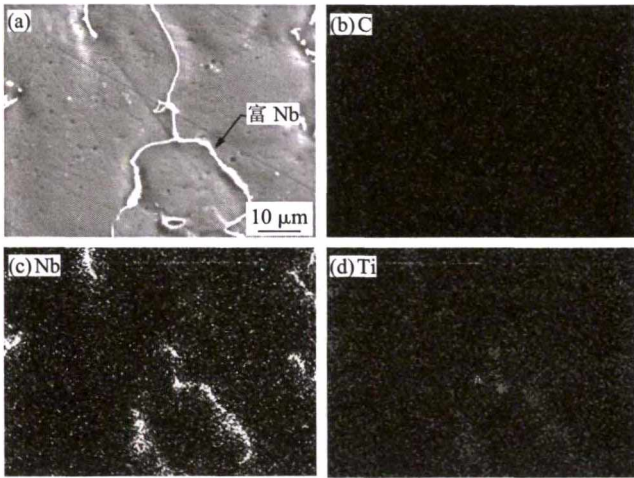
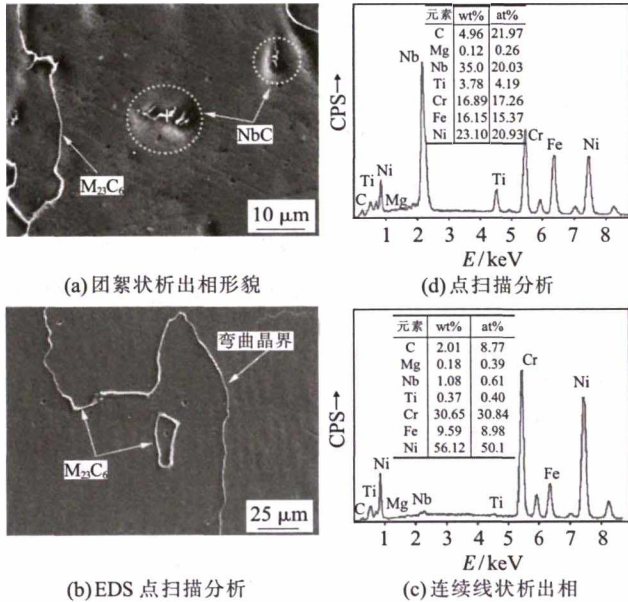


图6 Inconel 690堆焊层晶界附近析出相形貌及其EDS面扫描分析

Fig.6 Precipitates near the dendrite boundary of the Inconel 690 surfacing layer and EDS scanning result



(a)团絮状析出相形貌

(b)EDS点扫描分析

(c)连续线状析出相

图7 析出相形貌及EDS点扫描分析

Fig.7 The precipitates and EDS spot scanning result

元素构成,其中 Nb 元素含量高达 35%(质量分数),远远高于原始焊接材料中的 Nb 元素含量。结合此处 C 和 Nb 元素的原子百分比接近 1:1,可知此处的析出相应为 NbC。附近有部分 Ti 元素富集,但并未直接观测到 TiC 相。这是因为 NbC 相形成温度稍低于 TiC,NbC 往往以先析出 TiC 相为核心形核,通过包覆 TiC 相长大^[16]。

通过晶界位置白色线状析出相进行能谱分析,可知其主要组成元素为 C、Ti、Fe、Ni 和 Cr。Nb 和 Ti 没有富集,可推断此处的碳化物种类为 M₂₃C₆。Inconel 690 的 MC 以及 M₂₃C₆ 相对晶界产生钉扎,

阻碍晶界的移动,即可以起到第二相强化作用^[17]。因此,晶界多呈现弯曲效应,可提高高温服役时的晶界稳定性以及承受载荷时的强韧性。

2.1.4 XRD 分析

图 8 为基体和堆焊层组织的 XRD 衍射图谱,可以得出 Inconel 690 堆焊层的主要组成相为体心立方结构的奥氏体(γ)组织。从 SEM 中观察到的 M₂₃C₆、NbC 以及 TiC 等碳化物相因含量太少,其 X 射线衍射峰被基底峰掩盖而未呈现出其特征峰。而在 SA508Gr.3Cl.2 低合金钢基体组织的 XRD 衍射图谱中,其主要组成相为体心立方结构相,即为铁素体(α)或与其结构相近的马氏体组织。此外,SA508Gr.3Cl.2 基体的衍射图谱中还存在一些细小杂峰,结合前文组织分析可知其为碳化物相。

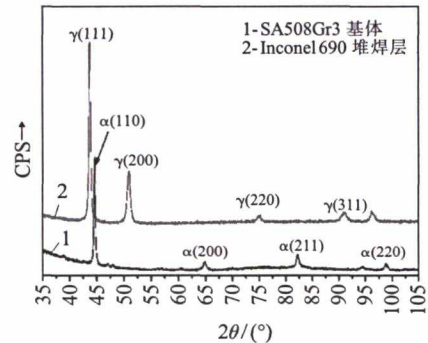


图8 母材和堆焊层 XRD 衍射图

Fig.8 XRD diffraction pattern of base metal and surfacing layer

2.2 堆焊层力学性能分析

2.2.1 显微硬度分析

图 9 为堆焊层界面附近显微硬度分布曲线。基体组织硬度为 159.5HV,由图 9 可知热影响区平均硬度为 181.5HV,堆焊层镍基合金平均硬度为 140.8HV。基体组织由铁素体、粒状贝氏体和碳化物(M₂₃C₆和 M₇C₃),使得其硬度高于以奥氏体相为主

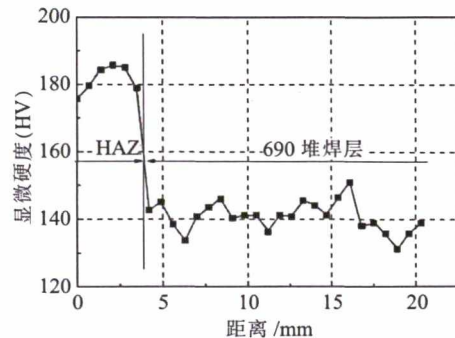


图9 堆焊层界面处的显微硬度

Fig.9 Micro-hardness of interface of surfacing layer

的镍基 Inconel690 堆焊层^[11]。母材的热影响区因经历焊接热循环及后续的高温回火作用,形成细小的回火索氏体相,因而在整个堆焊层界面处具有最高的硬度值。堆焊层组织因经历层间相互的热处理作用,使得堆焊层内部存一定的硬度值波动。

2.2.2 堆焊层冲击韧性

为保证核电设备的安全正常运行,通常要求镍基堆焊层在室温下冲击吸收功必须满足 $\geq 60\text{J}$ ^[14-15]。本文对 Inconel690 合金堆焊层进行了室温下的冲击韧性试验,可知堆焊层金属冲击吸收功为 268.11J,冲击韧度为 335.14J/cm²,远大于其安全规范值。

2.2.3 拉伸及断口分析

图 10 是基体材料和 Inconel 690 堆焊层试样拉伸前后的对比,拉伸后存在明显的缩颈,且堆焊层拉伸过程中整个试样变形均匀,堆焊层塑性优异。由拉伸前后拉伸样品宏观尺寸变化,可以明显看出堆焊层的断后伸长率明显高于基体材料,且拉伸后样品表面出现明显的褶皱起伏变形,显示出面心立方结构在拉伸过程中因流变应力和晶粒相对滑移旋转留下的变形痕迹。

图 11 为 Inconel 690 镍基堆焊层与母材的应力

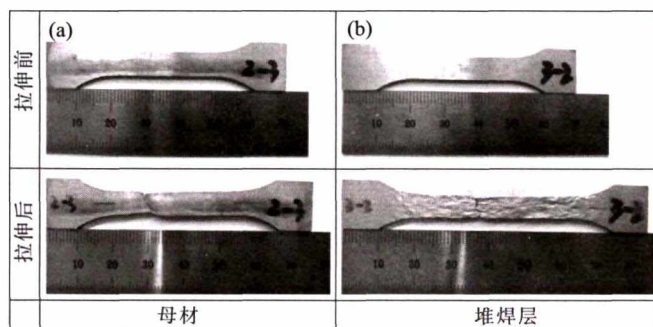


图 10 基体和堆焊层拉伸前后试样

Fig.10 Samples of base metal and surfacing layer before and after tensile test

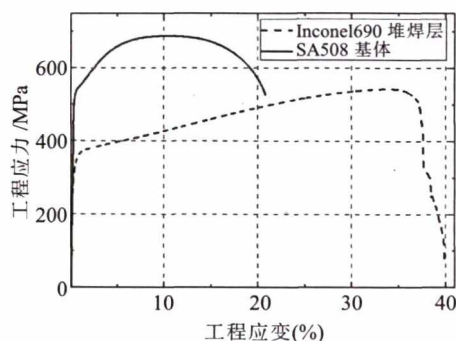


图 11 基体和堆焊层的拉伸曲线

Fig.11 Tensile curves of base metal and surfacing layer

应变曲线,可知 SA508Gr.3Cl.2 基体材料和 Inconel 690 镍基合金的屈服强度 $R_{p0.2}$ 为 534.2MPa 和 366.1MPa,抗拉强度 R_m 分别为 687.3MPa 和 541.4MPa,伸长率为 20.8%和 39.89%。母材因组织为体心立方的回火索氏体组织,使得其强度高于 Inconel 690 堆焊层。而堆焊层中的碳氮化物析出相可对堆焊层起到强化作用,提高其服役过程中的变形抗力^[16]。

图 12(a)、(b)为 SA508Gr.3Cl.2 基体材料拉伸断口,可知其断口分布着大小不一的韧窝,说明其断裂方式为韧性断裂,而大部分韧窝都比较细小,仅可见少量大而深的韧窝(图 12(b)虚线圈),说明其断裂前变形不够均匀和充分。图 12(c)、(d)为堆焊层拉伸断口,其韧窝分布均匀,且韧窝尺寸比低合金钢基体材料大而深,说明其断裂失效前,变形充分,具有更加优异的塑性。

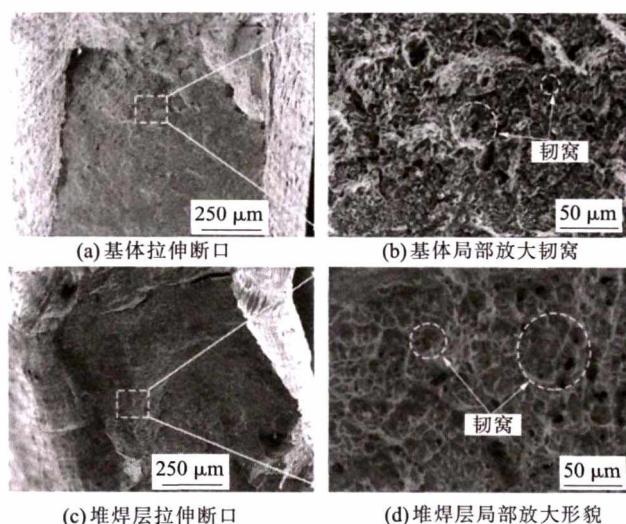


图 12 基体和堆焊层拉伸断口形貌

Fig.12 Tensile fracture morphologies of base metal and surfacing layer

3 结论

(1) 热丝电流 60~80A,焊接电压 14~18V,焊接速度 90~130 mm/min,送丝速度 4000~4800 mm/min 工艺参数下,可以得到无气孔和裂纹成型良好的 Inconel 690 堆焊层。

(2) Inconel 690 堆焊层主要由奥氏体所构成,其晶界附近及晶界上分布的 $M_{23}C_6$ 、NbC 和 TiC 等碳化物相可对晶粒生长、晶界迁移以及位错运动产生阻碍作用而产生强化作用。

(3) Inconel 690 堆焊层显微硬度为 140.8 HV, HAZ 显微硬度为 181.5 HV, (下转第 15 页)

其退火板 Δr 值更低。综合来看,高温卷取工艺下退火板 γ 织构更强,组元 $\{111\}\langle 110\rangle$ 和组元 $\{111\}\langle 112\rangle$ 强度差异更小,因此其塑性应变比 r 值更高,平面各向异性系数 Δr 值更低。

3 结论

(1) 卷取温度对超低碳 T-3 CA 钢中 TiC 粒子析出行为有较大影响,高温卷取形成的 TiC 粒子尺寸更为粗大,分布更为稀疏。

(2) 热轧粗大、稀疏的第二相粒子有利于退火过程中 $\{111\}$ 取向晶粒的优先长大和充分发展,使退火板 γ 织构更强,且其 $\{111\}\langle 110\rangle$ 组元和 $\{111\}\langle 112\rangle$ 组元强度差更小。

(3) 卷取温度对超低碳 T-3 CA 钢退火板性能有较大影响,卷取温度从 580℃ 提高到 680℃,退火板强度基本不变,塑性应变比 r 均值提高 0.26,平面各向异性系数 Δr 值降低 0.21,成形性能更好。

参考文献:

[1] 宋冀生,王曼星,袁宁武. DI 罐用材料及制罐技术的发展[J].

(上接第 10 页)


SA508Gr.3Cl.2 基体显微硬度 159.5 HV。基体组织的硬度值高于堆焊层奥氏体组织,HAZ 区域为回火索氏体,该处为堆焊层界面处硬度最高的区域。

(4) 基体材料和堆焊层屈服强度分别为 534.2 MPa 和 366.1 MPa,抗拉强度分别为 687.3 MPa 和 541.4 MPa,伸长率分别为 20.8% 和 39.89%。Inconel 690 镍基堆焊层在拉伸过程中变形充分,塑韧性优于基体的低合金钢组织。

参考文献:

- [1] 伍浩松,戴定. 2018 年世界核电工业发展回顾[J]. 国外核新闻,2019(2):14-21.
- [2] 沈文权. 中国核电工业可持续发展的战略思考 [J]. 中国能源,2005,27(7):5-7.
- [3] 张红斌,李守军,胡尧和,等. 国外关于蒸汽发生器传热管用 Inconel 690 合金研究现状 [J]. 特钢技术,2003,8(4):2-11.
- [4] Zinkle S J, Was G S. Materials challenges in nuclear energy [J]. Acta Materialia, 2013, 61(3):735-758.
- [5] 王吉孝,朱琦,王德恕,等. 690 镍基合金真空感应熔炼脱硫 [J]. 焊接学报,2011,32(6):77-80.
- [6] 王俭秋,黄发,柯伟. Inconel 690TT 和 Incoloy 800MA 蒸汽发

机械工程材料,1988(4):29-31.

- [2] Yan Y, Kang Y, Mo Z, et al. Correlation between texture, earing behaviour and dissolved carbon and nitrogen [J]. Materials Science and Technology, 2017, 33(3):311-316.
- [3] 朱晓东,宓小川,俞宁峰. 微 Ti 处理对低碳钢平面各向异性及织构的影响[J]. 材料热处理学报,2002,23(3):35-38.
- [4] 李俊. 生产工艺参数对 DI 用镀锡板性能的影响 [J]. 钢铁,1999,34(10):906-908.
- [5] 班必俊. 超低碳烘烤硬化钢各向异性的冶金因素探讨[J]. 宝钢技术,2006(2):70-73.
- [6] 程晓杰,李振,蔡阿云,等. 连续退火温度对 390MPa 级 IF 钢组织、织构和力学性能的影响 [J]. 特殊钢,2014,35(3):53-56.
- [7] 董登超,吴园园,张珂,等. 退火均热时间对 IF 钢织构及深冲性能的影响[J]. 热加工工艺,2019,48(10):220-222.
- [8] 贾涓,代礼斌,袁世来,等. P、Ti 对高强 IF 钢 $\{111\}$ 面积织构的影响[J]. 材料研究学报,2011,25(6):656-660.
- [9] 曹圣泉,张津徐,吴建生. IF 钢织构与晶界特征分布的研究 [J]. 金属学报,2004,40(10):1045-1050.
- [10] 康永林. 现代汽车板工艺及成形理论与技术[M]. 北京:冶金工业出版社,2009. 

生器管材在高温高压水中的腐蚀行为研究 [J]. 金属学报,2016,52(10):1333-1344.

- [7] 李远,张立德,王金龙. INCONEL690 镍基合金带极电渣堆焊工艺研究[J]. 锅炉制造,2011(2):48-51.
- [8] 谢彦武,张立德. 镍基合金 690 预堆边堆焊和安全端环缝焊接工艺研究[J]. 电焊机,2019,49(4):266-270.
- [9] 李红英. 金属拉伸试样的断口分析[J]. 山西大同大学学报(自然科学版),2011,27(1):76-79.
- [10] 王驰,冉广,雷鹏辉,等. SA508 Gr. 3 Cl. 1 钢的疲劳和高周拉伸性能[J]. 材料工程,2018,46(5):151-158.
- [11] 韩战利,顾剑峰,潘建生. 核电大型锻件 SA508 Gr.3 钢金相图谱[M]. 上海:上海交通大学出版社,2016.
- [12] 郭洋,唐新华,邓胜杰,等. 焊接热影响区对 SA508Gr.3 钢落锤试验影响研究[J]. 焊接,2018(7):24-28.
- [13] Collins M G, Ramirez A J, Lippold J C. An investigation of ductility-dip cracking in nickel-based weld metals-Part III [J]. Welding Journal, 2004, 83(2): 39-49.
- [14] 许雷雷,梁国兴. 承压热冲击下压力容器断裂力学分析[J]. 原子能科学技术,2014,48(11):2078-2084.
- [15] 李慧,夏爽,周邦新,等. 镍基 690 合金中晶界碳化物析出的研究[J]. 金属学报,2011,47(7):853-858.
- [16] Shen R R, Zhou Z, Liu P, et al. Effects of PWHT on the microstructure and mechanical properties of ERNiCrFe-7 all-weld metal [J]. Welding in the World, 2015, 59(3): 317-323. 