

核级 316H 管道熔敷金属蠕变性能表征

张博俊^{1,2}, 余华金³, 荆洪阳^{1,2}, 徐连勇^{1,2}, 赵雷^{1,2}

(1. 天津大学, 天津 300072; 2. 天津市现代连接技术重点实验室, 天津 300072;
3. 中国原子能科学研究院, 天津 300072)

摘要: 文中通过开展核级 316H 管道熔敷金属在 525 °C 不同应力下的蠕变试验, 对熔敷金属蠕变后的析出相演变、蠕变损伤机理和断裂机制进行研究。结果表明, 316H 熔敷金属的蠕变曲线由瞬时蠕变阶段、稳态蠕变阶段和加速蠕变阶段组成, 其高温蠕变机制为幂律蠕变。在蠕变断裂后的熔敷金属内部发现三种析出相: 在 δ 铁素体内部析出的具有强化作用的 Laves 相, 在 δ 铁素体与奥氏体界面析出的促进空洞形核长大的 σ 相和链状 M₂₃C₆。在 σ 相和链状 M₂₃C₆ 附近区域产生的蠕变空洞是蠕变失效的主要原因。在断口处观察到大小均匀的等轴韧窝, 说明熔敷金属的断裂机制为韧性断裂。

关键词: 316H; 析出相; 断裂机制

中图分类号: TG407 文献标识码: A

doi: 10.12073/j.hjxb.2019400320

0 序 言

快堆是世界上第四代先进核能系统的首选堆型, 代表了最新一代核能系统的发展方向, 具有高效的燃料利用率, 并且能够解决长寿命核废物的处置问题。近年来不断引起世界各核工业大国的高度重视, 同时也是中国核能发展“三步走(压水堆, 快堆, 聚变堆)”战略发展的关键一步。快堆系统中介质温度较高, 而压水堆核电站常用的 304L 和 316L 不锈钢不能够满足快堆复杂工况(高温、腐蚀、辐射和交变载荷等)对性能的要求。俄罗斯等欧洲国家采用 304LN 和 316LN 低碳控氮不锈钢作为快堆系统介质管道的主要材料。此外, 由于 316H 奥氏体不锈钢具有良好的高温强度、延展性以及高温抗氧化性, 也被部分国家采用为第四代先进核电系统介质管道的主要结构材料。介质管道结构复杂, 焊接技术成为不可避免的加工方法。焊接接头往往是高温结构中最为薄弱的环节, 是最容易产生蠕变失效的区域^[1-2]。近年来, Sakthivel 等人对 316L, 316LN 和 316LN+Nb 及其焊接接头进行了大量研究^[3-5]。通过长期蠕变试验, 分析了焊接接头蠕变变形和断裂行为, 研究了不同条件下焊接接头区域析出相和位错的演化规律以及蠕变损伤情况。但是, 目前没有关

于 316H 及焊接接头高温蠕变性能的研究。因此, 针对 316H 焊接接头熔敷金属的高温蠕变研究具有重要意义。

采用核级焊材 SFA-5.9 E16-8-2, 通过手工氩弧焊技术堆焊制成熔敷金属, 在 525 °C 不同应力水平下进行高温蠕变研究。利用透射电子显微镜研究了熔敷金属中析出相、析出位置、形貌以及演化规律, 使用扫描电子显微镜研究了蠕变试样断裂前沿的蠕变损伤情况以及高温下熔敷金属的蠕变断裂机制。

1 试验方法

采用手工氩弧焊将核级焊材 SFA-5.9 E16-8-2 在 316H 钢板上进行堆焊, 焊丝与 316H 不锈钢化学成分如表 1 所示, 焊接工艺参数如表 2 所示。焊后熔敷金属试件如图 1 所示, 沿垂直于熔敷金属的堆焊方向制成圆棒状蠕变试样, 蠕变试样标距为 50 mm, 直径为 5 mm。

快堆系统中介质管道服役温度为 505 °C, 设计温度为 525 °C, 实际所承受的轴向应力水平较低(~10 MPa), 设计寿命一般为 40 ~ 60 年。ASME BPVC-III Section 1 NH 规定了 316 不锈钢 525 °C、不同蠕变寿命下的最小断裂应力值(158 ~ 406 MPa)。研究过程中, 一般是通过开展高应力水平下

表 1 焊材成分 (质量分数, %)
Table 1 Chemical composition of electrode

材料	C	Cr	Ni	Mo	Mn	Si	P	Si	N
E16-8-2	0.1	16.4	9.4	1.9	1.6	0.03	0.03	0.4	0.03
316H	0.047	17.5	12.4	2.4	1.6	0.43	0.008	0.042	0.04

表 2 焊接参数
Table 2 Welding parameters

焊丝直径 d/mm	电流 I/A	电压 U/V	焊接速度 $v/(\text{cm} \cdot \text{s}^{-1})$
2.4	70 ~ 160	12 ~ 18	10 ~ 20

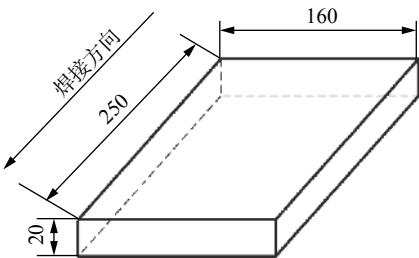


图 1 熔敷金属尺寸示意图 (mm)

Fig. 1 Schematic of deposited metal specimen size

的蠕变试验采用外推方法预测低应力水平的蠕变寿命。研究中的蠕变试验应力参照 ASME 中 316 不锈钢在 525 °C 下的数据进行设计, 重点分析了高应力水平下蠕变变形、析出相演化和蠕变断裂机制。根据 GB/T 2039—2012《金属材料单轴拉伸蠕变试验方法》, 采用蠕变试验机 (CRIMS RDJ50), 在 525 °C 下开展不同应力水平 (337.6, 360, 388, 406 MPa) 的熔敷金属单轴拉伸蠕变试验。

2 结果与分析

2.1 蠕变曲线

图 2 为 525 °C、不同应力水平 (337.6, 360, 388, 406 MPa) 得到的蠕变曲线, 蠕变寿命分别为 26, 125, 162 和 478 h, 如图 2 所示。

蠕变曲线呈现出典型的三个阶段: 瞬时蠕变阶段, 稳态蠕变阶段, 失稳断裂阶段。在蠕变初期, 熔敷金属变形抗力小, 蠕变速率较高, 随后由于变形引起加工硬化, 蠕变速率逐渐降低。在加工硬化作用增强的同时, 回复软化速率也逐渐增加。当二者达到平衡状态时, 蠕变速率达到最小值, 蠕变过程达到第二阶段, 即稳态蠕变阶段, 该阶段内蠕变速率保持恒定。随着蠕变进行到第三阶段, 蠕变变形

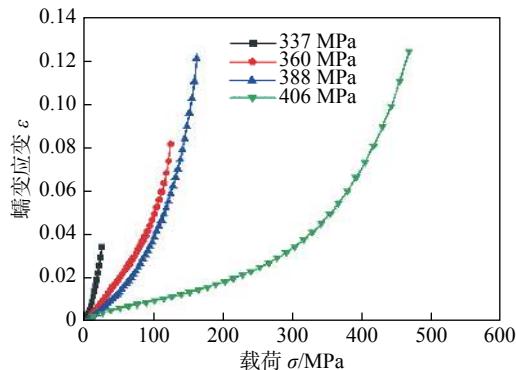


图 2 525 °C 不同应力水平下的蠕变应变-时间曲线
Fig. 2 Creep strain-time curves at 525 °C under various stresses

产生的空洞逐渐长大, 变形速率快速增加最终导致失稳断裂^[6]。

根据研究中的试验应力 (σ) 和最小蠕变速率 ($\dot{\varepsilon}$) 所绘制的双对数曲线如图 3 所示, 一般用最小蠕变速率表征稳态蠕变速率, 其与试验应力的关系可以用诺顿方程来表示, 即

$$\dot{\varepsilon} = A\sigma^n \quad (1)$$

式中: A 是蠕变应力系数; n 是蠕变应力指数, 二者是与试验温度有关的材料参数。 A 和 n 分别为该双对数曲线的纵截距和斜率, n 的值代表着材料的蠕变变形机制。

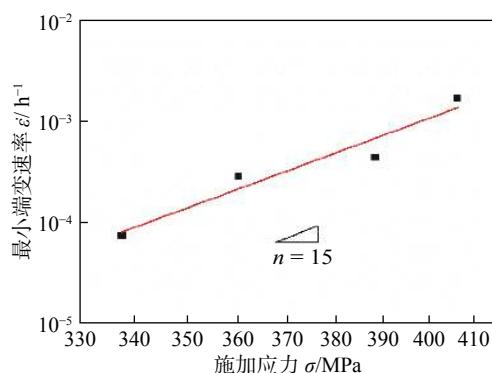


图 3 最小蠕变速率-施加应力关系曲线
Fig. 3 Relationship curve of minimum creep rate and applied stress

在研究中, 由于施加的应力较高, n 的值也相对较高, $n = 15$ 表明 316H 熔敷金属在高应力下的主

要蠕变变形机制是幂律蠕变 (power-law creep)^[7-8].

2.2 析出相演变

2.2.1 原始组织分析

采用扫描电子显微镜对熔敷金属进行微观组织观察并进行能谱分析. 如图 4 所示, 熔敷金属由典型的奥氏体柱状晶和柱状晶间的 δ 铁素体双相组织构成. 该熔敷金属的凝固模式为典型的 AF 模

式: 熔池凝固时奥氏体为初始析出相, 凝固结束前, 通过共晶反应生成部分 δ 铁素体. 该模式的发生主要由于在熔池凝固过程中, 有足够的 δ 铁素体生成元素 (主要是铬和钼) 在亚界面处发生偏聚, 从而促使生成了 δ 铁素体. δ 铁素体生成元素的偏聚使得 δ 铁素体更加稳定, 因而在随后的冷却过程中 δ 铁素体不转化为奥氏体.

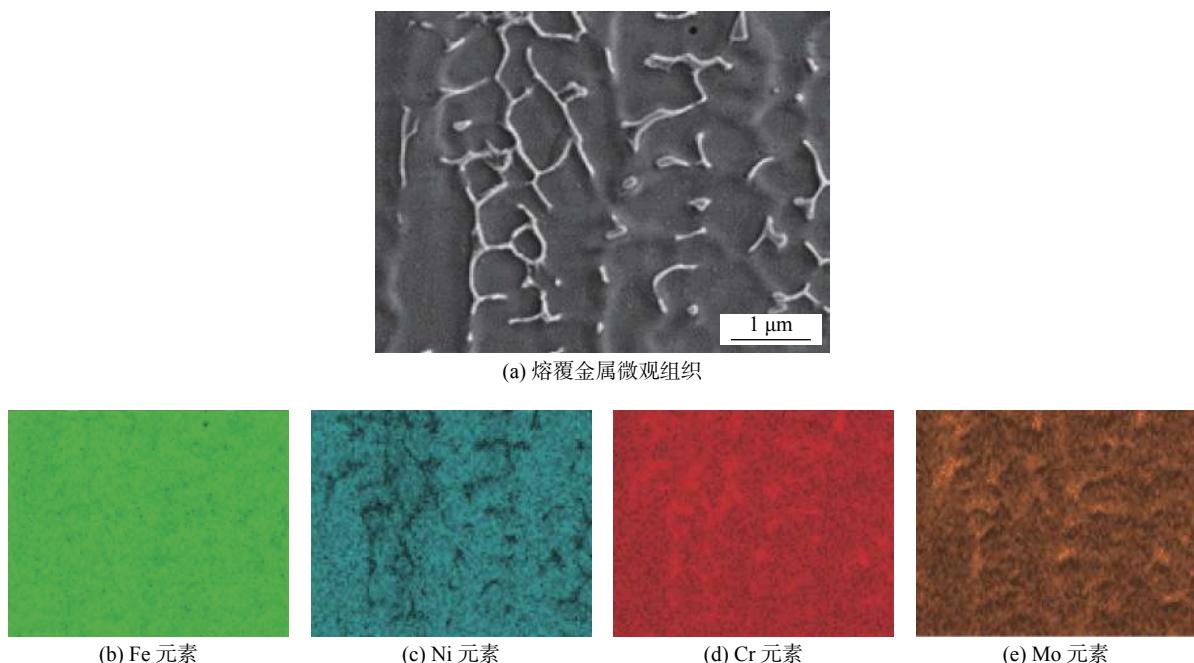


图 4 熔敷金属 EDS 结果
Fig. 4 EDS results of deposited weld metal

透射电子显微镜下的熔敷金属微观组织形貌如图 5 所示, 白色虚线表示奥氏体与 δ 铁素体界面. δ 铁素体呈蠕虫状, 奥氏体内部存在高密度位错, 并未观察到析出相.

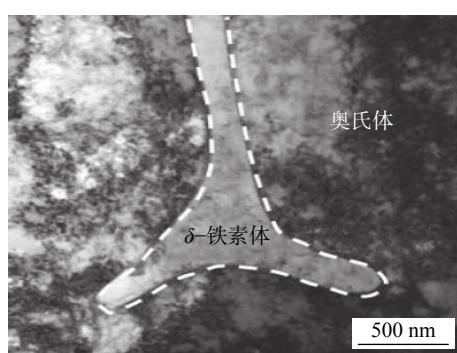


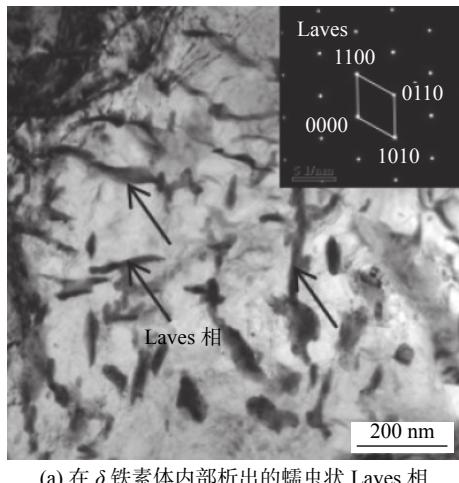
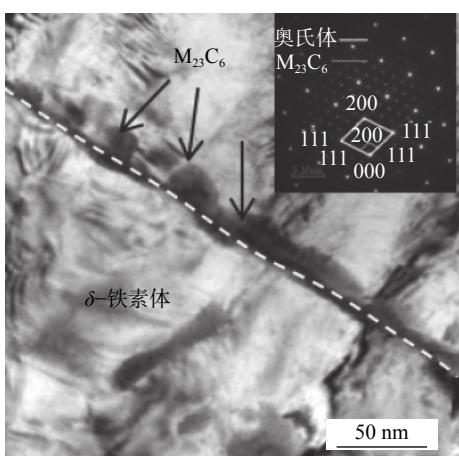
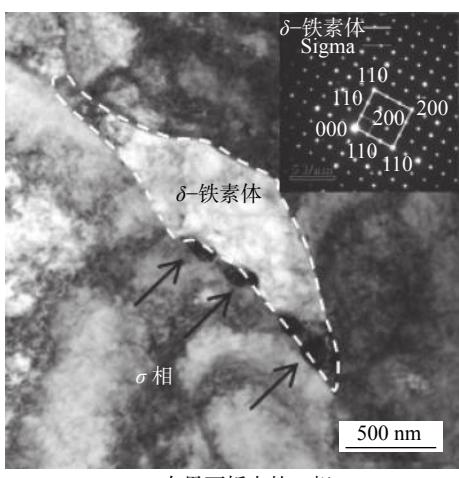
图 5 透射电子显微镜下 δ 铁素体与奥氏体形貌
Fig. 5 TEM morphology of δ -ferrite and austenite

2.2.2 蠕变后的析出相观察

熔敷金属中的 δ 铁素体对整个焊接接头的高

温蠕变变形与断裂行为有重要影响. δ 铁素体由于在凝固过程中富集了铬、钼等元素, 高温条件下碳化物和金属间化合物容易在 δ 铁素体与奥氏体界面处析出. 利用透射电子显微镜对蠕变前后的熔敷金属进行观察, 通过选区电子衍射技术确认了析出相种类, 发现熔敷金属在经过高温蠕变后形成三种析出相: Laves 相, $M_{23}C_6$ 和 σ 相.

以熔敷金属在 525 °C, 337.6 MPa 条件下蠕变为例, 所观察到的三种析出相及其衍射花样如图 6 所示. Laves 相, $M_{23}C_6$ 和 σ 相分别由箭头指出, 白色虚线表示奥氏体和 δ 铁素体界面. 如图 6a 所示, 蠕变过后, 在 δ 铁素体内部观察到蠕虫状的 Laves 相. Laves 相普遍存在于奥氏体耐热钢中, 是一种典型强化相, 但 Laves 相数量的增加和尺寸的增大达到临界条件后, 会严重降低材料的韧性. Laves 相在 δ 铁素体内部形核的原因是, δ 铁素体富集了 Laves 相形成所必需的合金元素; 同时,

(a) 在 δ 铁素体内部析出的蠕虫状 Laves 相(b) 在界面析出的链状 $M_{23}C_6$ (c) 在界面析出的 σ 相图 6 蠕变后熔敷金属中的 Laves 相, $M_{23}C_6$ 和 σ 相Fig. 6 Laves phase, $M_{23}C_6$ and σ phase in deposited metal after creep

δ 铁素体晶格间隙较大, 有利于元素扩散。

在 δ 铁素体与奥氏体界面处可以观察到大量 $M_{23}C_6$ 呈链条状析出, 如图 6b 所示。研究表明, 界面处的 $M_{23}C_6$ 会随着蠕变时间的增长而发生明显粗化, 使得界面“变宽”从而弱化界面^[9]。因此在高

温蠕变过程中, 界面处成为了熔敷金属内最薄弱的区域, 裂纹与空洞易在界面处形核长大。此外, 在 δ 铁素体与奥氏体界面处有 σ 相形成, 如图 6c 所示。 σ 相为脆硬相, 它的存在会降低材料韧性。同时, 在高温变形过程中, σ 相附近区域会产生应力集中, 造成一定的局部应力过高现象, 促使蠕变空洞与裂纹的产生。

2.3 蠕变损伤与断裂机制

为了探究熔敷金属在蠕变后的蠕变损伤情况, 在扫描电子显微镜下对断裂试样的纵截面进行了观察。如图 7 所示, 试样断裂前沿区域, 奥氏体与 δ 铁素体界面处形成的蠕变空洞是试样发生破坏的主要原因。熔敷金属在蠕变过程中, 界面处形成的链状 $M_{23}C_6$ 削弱了奥氏体与 δ 铁素体之间的结合力, 降低材料蠕变变形抗力; 同时, 脆硬的 σ 相会在界面处造成一定程度的应力集中, 二者均会促进空洞的形成与长大, 加速试样的断裂。

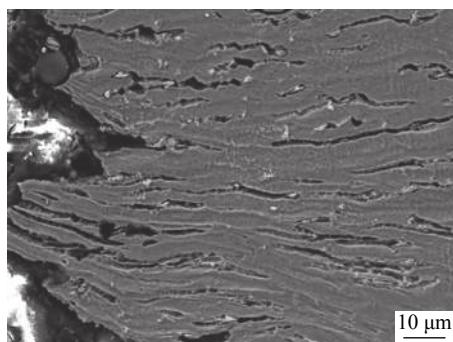


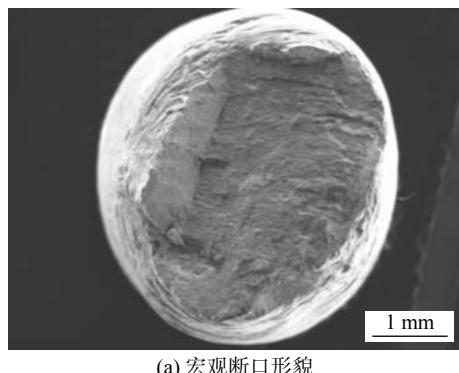
图 7 525 °C, 337.6 MPa 条件下产生的蠕变空洞
Fig. 7 Creep cavities in deposited metal after creep at 525 °C under 337.6 MPa

不同应力水平下断裂的熔敷金属蠕变试样如图 8 所示。断裂位置均处于标距内, 试样断裂前沿均发生明显的颈缩。采用扫描电子显微镜对断裂试样的断口进行观察, 不同条件下的断口形貌呈现相

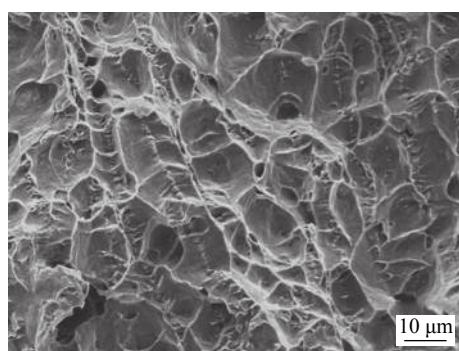


图 8 蠕变断裂试样
Fig. 8 Creep rupture specimens

同的特征。以在 337.6 MPa 应力条件下断裂的试样为例进行分析, 其宏观和微观断口形貌分别如图 9 所示。熔敷金属具有良好的塑性和韧性, 在蠕变过程中产生大量的不均匀塑性变形, 导致蠕变断裂后, 断口表面不平整; 微观上表现为大量大小均匀的等轴韧窝。以上分析表明, 熔敷金属蠕变断裂机制为韧性断裂^[10]。



(a) 宏观断口形貌



(b) 微观断口形貌

图 9 525 °C, 337.6 MPa 条件下断口形貌

Fig. 9 SEM fracture surface images of ruptured specimen at 525 °C under 337.6 MPa

3 结 论

(1) 不同应力水平的蠕变曲线表现为相同的特征, 均由蠕变速率较高的第一阶段、速率相对恒定的第二阶段以及加速蠕变的第三阶段组成。525 °C 条件下, 熔敷金属的蠕变应力指数为 15, 表明熔敷金属在高温下发生的是幂律蠕变。

(2) 熔敷金属蠕变断裂后可以观察到三种析出相: 在 δ 铁素体内部析出的 Laves 相为熔敷金属高温下的主要强化相, 在 δ 铁素体与奥氏体边界析出的 σ 相和链状 $M_{23}C_6$ 均会促进微空洞的形核长大。

(3) 奥氏体与 δ 铁素体界面处形成的蠕变空洞是蠕变试样发生破坏的主要原因, 空洞的产生与界面处析出的 σ 相和 $M_{23}C_6$ 有关。断口分析表明, 熔

敷金属断裂机制为韧性断裂。

参 考 文 献:

- [1] 雷玉成, 张 鑫, 陈 玲, 等. 中国低活化马氏体钢 TIG 焊焊接接头的高温蠕变性能分析 [J]. 焊接学报, 2016, 37(3): 5 – 8.
Lei Yucheng, Zhang Xin, Chen Ling, et al. Analysis on creep properties of TIG welding joints of China low activation martensitic steel[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2016, 37(3): 5 – 8.
- [2] 田志凌, M·Steen. X20CrMoV12·1 钢焊接接头的蠕变行为 [J]. 焊接学报, 1992, 13(2): 79 – 84.
Tian Zhiling, M·Steen. Creep behavior of X20CrMoV12·1 welded joint[J]. Transactions of the China Welding Institution, 1992, 13(2): 79 – 84.
- [3] Sakthivel T, Vasudevan M, Laha K, et al. Comparison of creep rupture behaviour of type 316L(N) austenitic stainless-steel joints welded by TIG and activated TIG welding processes[J]. Materials Science & Engineering A, 2011, 528(22-23): 6971 – 6980.
- [4] Vijayanand V D, Laha K, Parameswaran P, et al. Microstructural evolution during creep of 316LN stainless steel multi-pass weld joints[J]. Materials Science and Engineering: A, 2014, 607: 138 – 144.
- [5] Vlastimil V. Creep behaviour and microstructural evolution in AISI 316LN + Nb steels at 650 °C[J]. Materials Science & Engineering A, 2011, 528(12): 4232 – 4238.
- [6] Zhang Y, Jing H, Xu L, et al. Microstructure and texture study on an advanced heat-resistant alloy during creep[J]. Materials Characterization, 2017, 130: 156 – 172.
- [7] Xiao B, Xu L, Zhao L, et al. Microstructure evolution and fracture mechanism of a novel 9Cr tempered martensite ferritic steel during short-term creep[J]. Materials Science and Engineering: A, 2017, 707: 466 – 477.
- [8] Zhang Y, Jing H, Xu L, et al. High-temperature deformation and fracture mechanisms of an advanced heat resistant Fe-Cr-Ni alloy[J]. Materials Science and Engineering: A, 2017, 686: 102 – 112.
- [9] 杨 滨. CrMoV-9%Cr 转子钢窄间隙埋弧焊焊接接头的蠕变行为研究 [D]. 上海: 华东理工大学, 2017.
- [10] Zhang Y, Jing H, Xu L, et al. Design and performance of weld filler metal to match an advanced heat-resistant Fe-Cr-Ni alloy[J]. Materials Science & Engineering A, 2018, 721: 103 – 116.

第一作者简介: 张博俊, 男, 1993 年出生, 硕士。主要从事 316H 焊接接头高温蠕变相关科研工作。Email: bjzhang2017@163.com

通信作者简介: 徐连勇, 男, 教授。Email: xulianyong@tju.edu.cn