

# 氦离子辐照对 316L 钢焊缝微观结构及性能影响

雷玉成, 张伟伟, 刘丹, 李鑫

(江苏大学, 镇江, 212013)

**摘要:** 316L 不锈钢作为压水堆候选结构材料, 在服役过程中需要承受辐照效应. 为了探明辐照对 316L 焊缝微观结构及性能的影响及作用机制, 系统研究了经氦离子辐照后 316L 钢焊缝表面形貌、微观组织结构、显微硬度及电化学腐蚀性能的变化规律. 结果表明, 150 keV 氦离子辐照后试样表面产生大量细小的孔洞, 这导致试样耐腐蚀性能降低, 母材和焊缝金属腐蚀电流密度分别增加  $5.42 \times 10^{-5}$  与  $5.91 \times 10^{-5}$  A/cm<sup>2</sup>. 辐照导致试样内部出现氦泡、位错等缺陷, 这些缺陷使得试样产生辐照肿胀和辐照硬化现象, 母材与焊缝肿胀率分别为 0.103% 与 0.181%, 显微硬度分别提高 2.33 与 2.55 GPa. 通过 EBSD 测试方法证实, 焊缝金属晶粒尺寸较大, 使得其抗辐照性能相比 316L 钢稍差.

**创新点:** (1) 试验使用电化学腐蚀测试来研究氦离子辐照对焊缝金属与母材耐腐蚀性.

(2) 探究晶粒尺寸对焊缝与母材抗辐照性能的影响.

**关键词:** 氦离子辐照; 316L 不锈钢; 焊缝金属; 显微硬度; 电化学腐蚀

**中图分类号:** TL 341; TG 405

**文献标识码:** A

**doi:** 10.12073/j.hjxb.20210423002

## 0 序言

核能作为一种清洁可持续发展的新能源, 在全球范围被广泛使用. 发展核电站首先必须保证反应堆的安全性, 而反应堆结构材料的耐辐照性能是核电站安全运行的关键因素之一<sup>[1]</sup>.

在聚变堆中结构材料需常年经受氘-氚反应产生的氦原子与高能中子轰击<sup>[2]</sup>, 所以对结构材料的抗辐照性能提出了更严格的要求. 316L 奥氏体不锈钢因其较高的强度、塑性、热强性以及优良的耐腐蚀性在核电中大量使用, 被广泛认为是第一壁的候选材料<sup>[3]</sup>, 因此研究 316L 奥氏体不锈钢辐照效应意义重大. Jin 等人<sup>[4]</sup>采用氦离子、质子与铁离子辐照研究奥氏体不锈钢微观结构变化发现材料内产生位错环、空洞以及辐照偏析等现象, 氦离子辐照产生的位错环密度最高, 质子辐照元素偏析最明显. Sun 等人<sup>[5]</sup>利用氦离子辐照选择性激光熔化制造的 316L 钢, 研究其辐照后微观结构的变化. 结果表明激光熔化成形过程形成的细胞亚晶粒和纳米

氧化物夹杂物可以吸收氦原子和辐照缺陷, 从而提高了材料的耐辐照性. 可以发现辐照效应主要包括: 辐照诱导微观结构的变化<sup>[4-6]</sup>及辐照诱导硬化<sup>[6-7]</sup>等问题.

对于反应堆结构材料辐照已经进行了大量研究, 但辐照对反应堆结构材料焊缝组织和性能的影响机制以及辐照后焊缝耐腐蚀性能方面的研究甚少. 采用氦离子辐照 316L 不锈钢母材与焊缝金属, 对比研究氦离子辐照对其表面形貌、微观结构、显微硬度以及电化学腐蚀性能方面的影响.

## 1 试验方法

### 1.1 焊接工艺与试样制备

试验使用 TIG 焊方法对 4 mm 厚 316L 不锈钢板进行双面焊接. 采用的钨电极和焊丝的直径分别为 2.4 和 1.2 mm. 焊接参数为: 气体流量 6.5 L/min, 电压 17.8 V, 焊接速度 120 mm/min, 电流 120 A. 使用线切割将焊缝切成 10 mm × 10 mm × 3 mm 尺寸的试样进行显微硬度、表面形貌与电化学腐蚀试验与 10 mm × 10 mm × 0.5 mm 尺寸的试样用于微观结构分析. 最后将试样进行抛光处理留作辐照试

验使用.

## 1.2 离子辐照

试样固定在 LC16B 型离子注入机中进行离子辐照. 辐照试验在室温下进行, 采用 150 keV  $\text{He}^+$  离子对试样进行辐照, 辐照剂量为  $2 \times 10^{17} \text{ n/cm}^2$ . 图 1 为 SRIM 软件<sup>[8]</sup> 计算的氦离子辐照后试样损伤量的分布. 可知氦离子辐照在试样中射程为 664 nm, 在 384 nm 左右达到 4.93 dpa 的峰值损伤量.

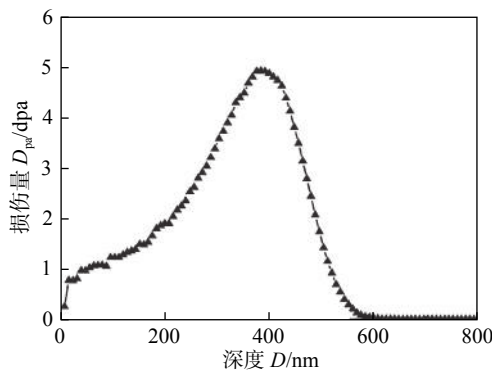


图 1  $2 \times 10^{17} \text{ n/cm}^2$  剂量下氦离子辐照损伤量随辐照深度变化曲线

Fig. 1 Variation curve of helium ion irradiation damage with irradiation depth at a dose of  $2 \times 10^{17} \text{ n/cm}^2$

## 1.3 表征及性能测试

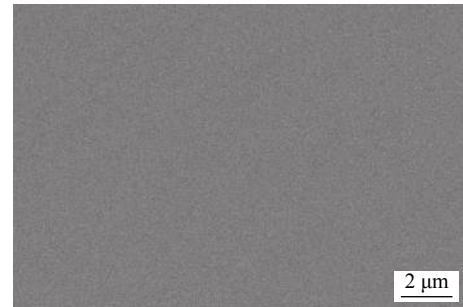
试验中利用扫描电子显微镜 (scanning electron microscope, SEM) 观察试样表面形貌变化. 利用电子背散射衍射 (electron backscattered diffraction, EBSD) 测量试样晶粒尺寸大小. 采用透射电子显微镜 (transmission electron microscope, TEM) 测量试样微观结构变化. 利用电化学工作站, 测量辐照前后试样耐腐蚀性能变化, 试验中采用饱和甘汞电极作为参比电极, 铂片作为辅助电极, 试样作为工作电极进行极化测试. 所有测试均在 25 °C 的 3.5% (质量分数) NaCl 溶液中进行, 极化测试扫描速度为 0.01 V/s. 使用纳米压痕设备 (U9820A Nano Indenter G200) 测量试样的显微硬度, 使用的压头为 Berkovich 三棱锥压头. 为了消除基底, 试验中采用连续刚度模式 (continuous stiffness method, CSM) 测量试样显微硬度.

## 2 试验结果

### 2.1 表面形貌变化

图 2 为氦离子辐照前后母材与焊缝金属表面

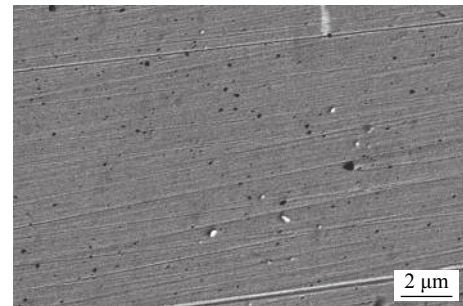
SEM 形貌观测结果. 由图 2a 和图 2b 可以发现, 辐照前试样经过打磨抛光处理, 试样表面光滑平整, 并未发现明显孔洞. 由图 2c 与图 2d 可知, 在经过氦离子辐照后试样表面出现大量细小孔洞. 这是由于辐照过程中, 离子轰击溅射造成试样表面形



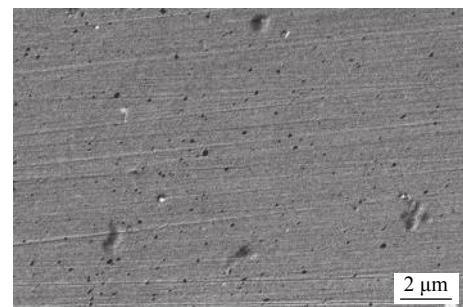
(a) 未辐照的母材



(b) 未辐照的焊缝金属



(c) 辐照后的母材



(d) 辐照后的焊缝金属

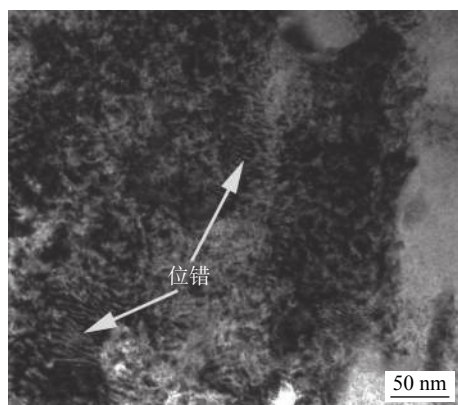
图 2 氦离子辐照前后试样表面形貌 SEM 图

Fig. 2 SEM image of the surface morphology of the sample before and after helium ion irradiation. (a) unirradiated base metal; (b) unirradiated weld metal; (c) base material after irradiation; (d) weld metal after irradiation

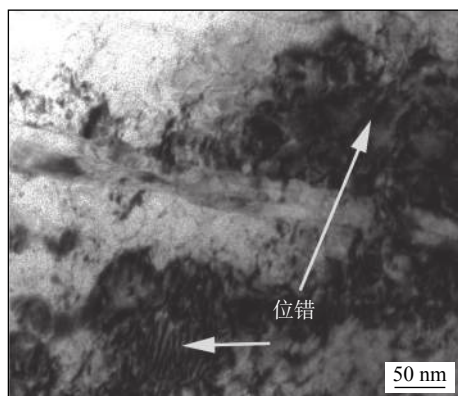
成辐照孔洞等表面缺陷。此外,氦离子辐照过程中试样表面温度升高,产生温度梯度,这使得空位型缺陷会沿着辐照试样的表面扩散,然后聚集成大尺寸空位团簇,从而导致试样表面形成孔洞。Kai 等人<sup>[9]</sup>氦离子辐照 CLAM 钢后材料表面同样形成辐照孔洞。

## 2.2 微观结构变化

离子辐照将会导致试样微观结构变化,图 3 为氦离子辐照后母材与焊缝金属 TEM 微观组织结构,可以发现氦离子辐照试样内观察到大量位错及黑斑状辐照缺陷。这些缺陷是因氦离子辐照生成的点缺陷扩散迁移所致。



(a) 氦离子辐照后母材位错微观结构



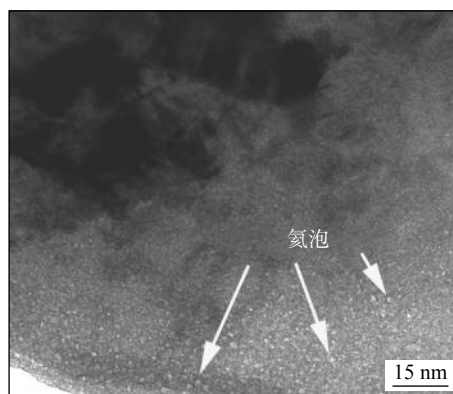
(b) 氦离子辐照后焊缝金属位错微观结构

图 3 氦离子辐照后试样微观结构 TEM 照片

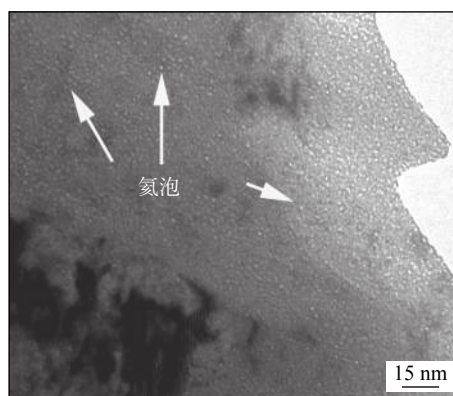
Fig. 3 TEM image of the microstructure of the sample after helium ion irradiation. (a) base metal; (b) weld metal

氦离子辐照除在试样中生成位错等辐照缺陷外还会形成氦泡,这是因为氦原子基本上不能溶解在钢中所致。图 4 为 TEM 下观察到氦泡的形貌。从图 4 可知氦离子辐照后母材与焊缝金属中产生大量均匀细小、高密度、近似于球形的氦泡。图 5 为试样氦泡尺寸分布统计结果,氦离子辐照后母材

中氦泡平均尺寸和密度分别为  $0.91 \text{ nm}$  和  $2.6 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ ,而氦离子辐照后焊缝金属中氦泡平均尺寸和密度分别为  $1.13 \text{ nm}$  和  $2.4 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ 。与母材相比,氦离子辐照后焊缝金属中氦泡的平均尺寸更大,其氦泡密度稍有减少。



(a) 氦离子辐照后母材氦泡形貌



(b) 氦离子辐照后焊缝金属中氦泡形貌

图 4 TEM 拍摄的氦泡形貌

Fig. 4 Helium bubble morphology photographed by TEM. (a) base metal; (b) weld metal

## 2.3 显微硬度的变化

氦离子辐照深度较浅仅有几百纳米,采用传统硬度测量方法无法达到测试精度,所以试验中使用纳米压痕技术来测量试样显微硬度的变化。为了获得辐照损伤层的显微硬度,纳米压痕测试最大压入深度设定为  $1 \mu\text{m}$ 。图 6 为氦离子辐照前后试样显微硬度随压入深度的变化曲线。由于表面效应的存在,一般忽略  $0 \sim 50 \text{ nm}$  范围内的硬度,可以发现试样显微硬度随压入深度增加逐渐减低,即出现压痕尺寸效应,当压入深度超过一定范围后其硬度基本趋于平缓。纳米压痕测试结果表明氦离子辐照后母材与焊缝金属显微硬度都明显提高。母材与焊缝金属显微硬度分别增加了  $2.33$  与  $2.55 \text{ GPa}$ 。这与氦离子辐照后试样中产生的缺陷有关。



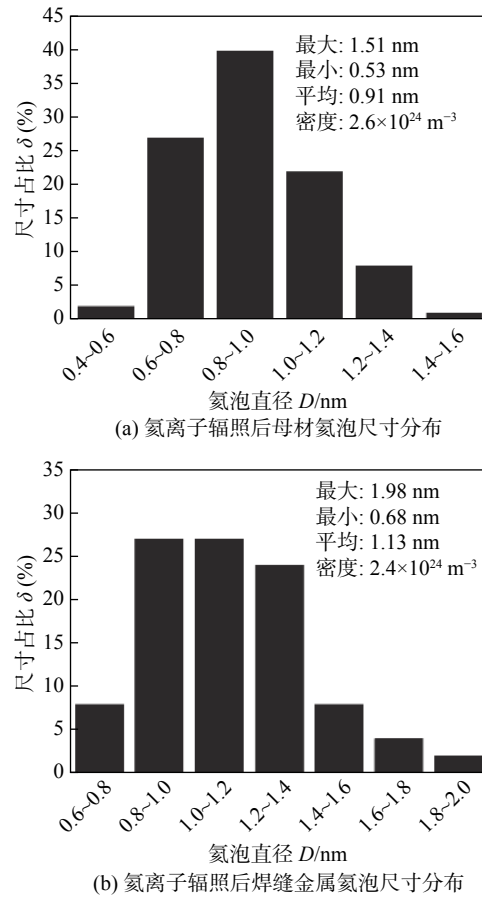


图 5 氦离子辐照后试样氦泡尺寸分布

Fig. 5 Helium bubble size distribution of sample after helium ion irradiation. (a) base metal; (b) weld metal

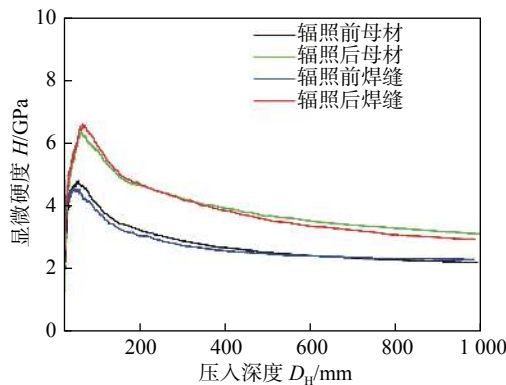


图 6 氦离子辐照前后试样显微硬度随压入深度变化曲线

Fig. 6 Variation curve of microhardness of specimen with indentation depth before and after helium ion irradiation

## 2.4 电化学腐蚀性能的变化

反应堆结构材料会受到环境介质的化学或者电化学作用, 从而引起材料变质或发生破坏现象. 因此, 试验中使用电化学腐蚀试验来测试辐照后试样的耐腐蚀性能的变化.

图 7 为氦离子辐照前后母材与焊缝金属极化曲线. 可以发现, 氦离子辐照后试样的极化曲线都向右上方偏移. 电化学腐蚀试验测得试样的电化学参数, 如表 1 所示,  $E_{\text{corr}}$  为腐蚀电位,  $I_{\text{corr}}$  为腐蚀电流密度. 氦离子辐照后母材与焊缝金属腐蚀电位向右偏移 0.17 V, 而腐蚀电流密度分别增加  $5.42 \times 10^{-5}$  与  $5.91 \times 10^{-5} \text{ A/cm}^2$ . 电化学腐蚀过程主要由动力学因素决定, 氦离子辐照后试样自腐蚀电流密度增大, 表明试样腐蚀速率增加, 氦离子辐照使其耐腐蚀性能降低. 相对于焊缝金属而言, 母材腐蚀电流密度增加较少, 抗辐照性能稍好.

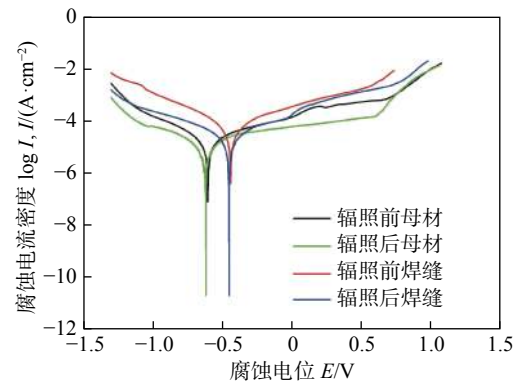


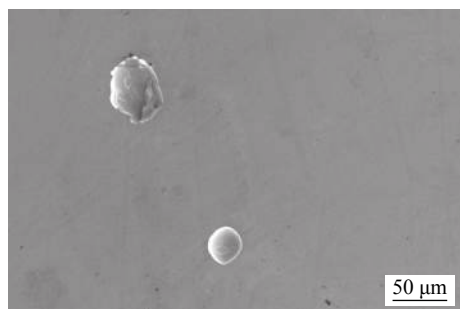
图 7 氦离子辐照前后试样极化曲线

Fig. 7 Polarization curve of specimen before and after helium ion irradiation

表 1 电化学腐蚀测试结果  
Table 1 Electrochemical corrosion test results

位置	腐蚀电位 $E_{\text{corr}}/\text{V}$	腐蚀电流密度 $I_{\text{corr}}/(\text{A} \cdot \text{cm}^{-2})$
母材	-0.61	$2.01 \times 10^{-5}$
焊缝	-0.62	$2.31 \times 10^{-5}$
辐照母材	-0.44	$7.44 \times 10^{-5}$
辐照焊缝	-0.45	$8.22 \times 10^{-5}$

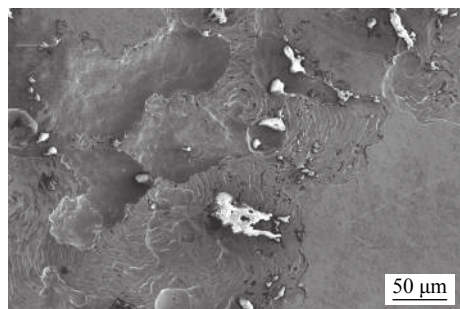
图 8 为电化学腐蚀后不同试样表面形貌. 可以发现电化学腐蚀后试样表面出现腐蚀坑, 母材表面形成均匀近似圆形分布的腐蚀坑, 而焊缝金属腐蚀坑呈斑点状分布. 氦离子辐照试样表面形成大片的腐蚀坑, 腐蚀坑尺寸显著增加, 辐照试样耐腐蚀能力显著降低, 这与氦离子辐照后试样表面生成的辐照孔洞等缺陷有关.



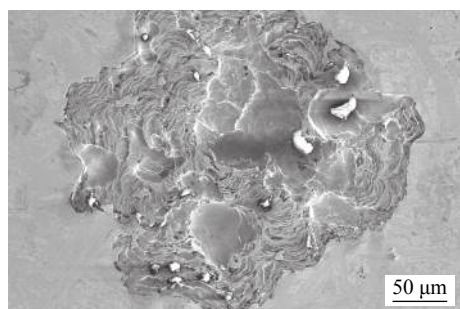
(a) 母材电化学腐蚀后表面形貌



(b) 焊缝金属电化学腐蚀后表面形貌



(c) 辐照母材电化学腐蚀后表面形貌



(d) 辐照焊缝金属电化学腐蚀后表面形貌

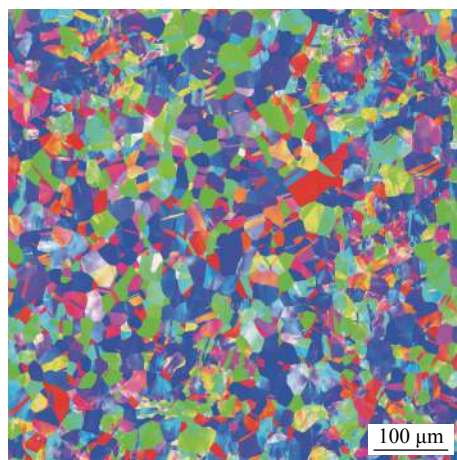
图 8 电化学腐蚀后试样表面形貌 SEM 图

Fig. 8 SEM image of sample surface morphology after electrochemical corrosion. (a) base metal; (b) weld metal; (c) irradiated base metal; (d) irradiated weld metal.

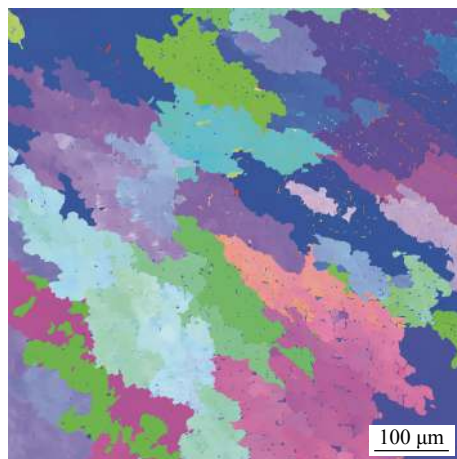
### 3 分析与讨论

晶界、亚晶界等是辐照点缺陷的吸收阱,晶粒尺寸的大小对材料耐辐照性影响较大. 试验中利用 EBSD 技术分别测量母材与焊缝金属的晶粒尺寸大小. 图 9 为母材与焊缝金属晶粒结构图,由晶

粒尺寸直径统计结果,可以得到母材与焊缝金属的晶粒尺寸直径平均值分别为 4.06 和 8.54  $\mu\text{m}$ ,焊后晶粒尺寸显著增大,这与焊接过程热循环有关系.



(a) 母材晶粒结构图



(b) 焊缝金属晶粒结构图

图 9 母材与焊缝金属晶粒结构图

Fig. 9 Base metal and weld metal grain structure diagram. (a) base metal; (b) weld metal

如 2.2 节所述氦离子辐照后试样中生成位错及氦泡等辐照缺陷,这些辐照缺陷的将会提高位错运动应力,导致试样显微硬度提高. 氦泡等辐照缺陷将会破坏基体的连续性,其硬化效果与第二相析出物硬化相似,可视为沉淀颗粒对位错的钉扎作用,这将会导致试样显微硬度提高. 位错环等强障碍位错运动的缺陷用式 (1) 进行计算,而像氦泡等弱障碍的缺陷用式 (2) 进行计算<sup>[10]</sup>,即

$$\Delta\sigma_y = M\alpha\mu b\sqrt{Nd} \quad (1)$$

$$\Delta\sigma_y = 18M\mu b d\sqrt[3]{N^2} \quad (2)$$

$$\Delta H \approx 3\Delta\sigma_y \quad (3)$$

式中:  $M$  为 Taylor 系数;  $\alpha$  为障碍强度因子;  $\mu$  为剪切模量;  $b$  为 Burgers 矢量;  $N$  为障碍物的体积密度;  $d$  为障碍物的平均直径. 对于给定的材料  $M$ ,

$\mu$  与  $b$  等是常数. 可以发现辐照硬化程度取决于缺陷的尺寸以及其密度. 此外, 氦泡等缺陷的存在将会导致试样产生辐照肿胀现象, 辐照肿胀的计算为

$$S = \frac{\Delta V}{V} \times 100\% \quad (4)$$

式中:  $S$  为肿胀率;  $\Delta V$  为体积改变量;  $V$  为辐照前体积. 计算得到氦离子辐照后母材与焊缝金属肿胀率分别为 0.103% 与 0.181%, 氦离子辐照后焊缝金属肿胀率更大, 这是因为母材与焊缝晶粒尺寸不同所致. Chen 等人<sup>[11]</sup> 研究结果表明晶界、亚晶界等可以吸收辐照生成的点缺陷, 增加晶界 (如: 细化晶粒等) 等可以明显提高材料的抗辐照性能. 由 EBSD 结果可知母材晶粒尺寸更细小, 当氦离子辐照晶粒尺寸更细小的母材时, 有更多数量的点缺陷发生复合, 从而使得母材中生成的缺陷更少, 故母材的肿胀率更低. 由上述微观结构变化结果表明, 氦离子辐照后母材和焊缝金属出现明显的损伤与微观结构的变化, 母材的辐照肿胀率小耐辐照性能好.

由 2.1 节可以发现, 氦离子辐照导致试样表面产生大量细小的辐照孔洞, 辐照孔洞等缺陷导致试样表面致密性氧化膜遭到破坏, 使得试样表面耐腐蚀性能降低. 在电化学腐蚀时, 辐照孔洞等缺陷处是试样的薄弱位置将会优先发现腐蚀, 这就会加速电化学腐蚀的进程, 导致试样极化曲线向右上方偏移, 腐蚀电流密度增加. 辐照孔洞等缺陷位置处优先集中的腐蚀, 使得辐照坑以辐照孔洞为中心不断向外长大, 从而使得试样表面生成如图 8 所示的大片的腐蚀坑. 相比母材而言, 焊缝金属腐蚀电流密度增加更大, 耐蚀性能下降更多, 抗辐照性能稍差.

## 4 结论

(1) 氦离子辐照后母材与焊缝金属产生位错及氦泡等辐照缺陷, 氦泡导致试样产生辐照肿胀现象, 母材与焊缝金属肿胀率分别为 0.103% 与 0.181%.

(2) 氦离子辐照后生成的位错、氦泡等辐照缺陷提高位错运动阻力导致试样显微硬度提高, 母材与焊缝金属显微硬度分别增加 2.9 与 2.84 GPa.

(3) 氦离子辐照后母材与焊缝金属表面生成辐照孔洞, 这导致试样耐腐蚀性能降低, 使得极化曲线向右上方偏移, 母材与焊缝金属腐蚀电流密度分别增加  $5.42 \times 10^{-5}$  与  $5.91 \times 10^{-5}$  A/cm<sup>2</sup>.

(4) 焊缝金属的辐照肿胀率更大, 耐蚀性能下

降更多, 抗辐照性能比母材稍差.

## 参考文献

- [1] Cahn R W, Haasen P, Kramer E J. Materials science and technology (V.10B): nuclear material[M]. Zhou Bangxin, Translation. Beijing: Science Press, 1999
- [2] 雷玉成, 刘丹, 姚奕强, 等. 调质处理对 CLAM 钢焊缝抗辐照性能的影响 [J]. 焊接学报, 2020, 41(7): 25 – 31.  
Lei Yucheng, Liu Dan, Yao Yiqiang, *et al.* Effect of quenching and tempering treatment on the radiation resistance of CLAM steel welds[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2020, 41(7): 25 – 31.
- [3] Li F, Lei Y, Zhang X, *et al.* Study on microstructure change and hardening of 316L steel weld seam after helium ion irradiation[J]. Fusion Engineering and Design, 2019, 148(5852): 111291 – 111293.
- [4] Jin H H, Ko E, Lim S, *et al.* Effects of helium and hydrogen on radiation-induced microstructural changes in austenitic stainless steel[J]. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, 2015(359): 69 – 74.
- [5] Sun X, Chen F, Huang H, *et al.* Effects of interfaces on the helium bubble formation and radiation hardening of an austenitic stainless steel achieved by additive manufacturing[J]. Applied Surface Science, 2019(467): 1134 – 1139.
- [6] Jin H H, Hwang S S, Choi M J, *et al.* Proton irradiation for radiation-induced changes in microstructures and mechanical properties of austenitic stainless steel[J]. Journal of Nuclear Materials, 2018(513): 271 – 281.
- [7] Liu J, Huang H, Gao J, *et al.* Defects evolution and hardening in the Hastelloy N alloy by subsequent Xe and He ions irradiation[J]. Journal of Nuclear Materials, 2019(517): 328 – 336.
- [8] Egeland G W, Valdez J A, Maloy S A, *et al.* Heavy-ion irradiation defect accumulation in ZrN characterized by TEM, GIXRD, nanoindentation, and helium desorption[J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, 435(s 1–3): 77 – 87.
- [9] Kai N, Qian M, Hao W, *et al.* Effect of He<sup>+</sup> fluence on surface morphology and ion-irradiation induced defect evolution in 7075 aluminum alloys[J]. Materials Research Express, 2018, 5(2): 1 – 5.
- [10] Wei Y P, Liu P P, Zhu Y M, *et al.* Evaluation of irradiation hardening and microstructure evolution under the synergistic interaction of He and subsequent Fe ions irradiation in CLAM steel[J]. Journal of Alloys & Compounds, 2016, 676: 481 – 488.
- [11] Chen X, Li Y, Zhu Y, *et al.* Enhanced irradiation and corrosion resistance of 316LN stainless steel with high densities of dislocations and twins[J]. Journal of Nuclear Materials, 2019, 517: 234 – 240.

第一作者: 雷玉成, 博士, 教授, 博士研究生导师; 主要从事先进连接技术与反应堆材料焊接接头腐蚀等方面的科研和教学工作; Email: yclei@ujcs.edu.cn.

(编辑: 张基隆)