doi:10.3969/j.issn.1673-9833.2022.04.007

温度对 Ni/Nb/Ni 复合中间层连接 YG20 和 42CrMo 钢扩散层微观组织和抗拉强度的影响

林伟伟¹, 孙浩斌², 张敬利³, 颜练武¹, 彭英彪¹

(1. 湖南工业大学 先进包装材料研发技术国家地方联合工程研究中心,湖南 株洲 412007;2. 蓬莱市超硬复合材料有限公司,山东 蓬莱 264000; 3. 赣州海盛硬质合金有限公司,江西 赣州 341000)

摘 要:以 Ni/Nb/Ni 作为复合中间层,采用固态真空扩散法分别于1150 ℃和1200 ℃下保温1h连接 YG20和42CrMo钢。利用扫描电镜、能谱仪、X射线微区衍射仪及力学试验机,对不同温度下的扩散层微 观组织结构和抗拉强度进行了分析。试验结果表明:在YG20/Ni和Ni/42CrMo钢界面处形成了(γ Fe,Ni) 和(Ni,Co)固溶体。碳原子从YG20与42CrMo钢两端向复合中间层扩散,并在扩散层形成碳化物。结合相 图热力学计算的C-Ni-Nb等温截面和扩散层物相的实验表征,分析了复合中间层物相的形成机理,Ni/Nb界 面处的物相依次为NbNi₃+NbC、Nb₂C和Nb₇Ni₆。NbNi₃和NbC的热膨胀系数差异导致NbC易从NbNi₃基 体中剥离,形成孔洞。随着连接温度由1150 ℃升高至1200 ℃,更多的NbC析出,导致孔洞量增加,使得 基体的抗拉强度从40 MPa降低至24 MPa,且均以脆性模式在NbNi₃+NbC 层失效。

关键词:扩散连接;硬质合金;钢;复合扩散层

中图分类号: TG3 文献标志码: A 文章编号: 1673-9833(2022)04-0047-07 引文格式: 林伟伟,孙浩斌,张敬利,等.温度对 Ni/Nb/Ni 复合中间层连接 YG20 和 42CrMo 钢扩散层 微观组织和抗拉强度的影响 [J]. 湖南工业大学学报, 2022, 36(4): 47-53.

Effects of Temperature on the Microstructure and Tensile Strength of YG20/42CrMo Steel Joint Diffusion with Ni/Nb/Ni Composite Intermediate Layer

LIN Weiwei¹, SUN Haobin², ZHANG Jingli³, YAN Lianwu¹, PENG Yingbiao¹

(1. National & Local Joint Engineering Research Center for Advanced Packaging Material and Technology, Hunan University of Technology, Zhuzhou Hunan 412007, China; 2. Penglai Super Hard Composite Materials Co. LTD., Penglai Shandong 264000, China; 3. Ganzhou Haisheng Cemented Caride Co. LTD., Ganzhou Jiangxi 341000, China)

Abstract: YG20 and 42CrMo steel are connected at 1 150 °C and 1 200 °C for 1h respectively by using Ni/V/Ni as the composite intermediate layer by adopting the solid-state vacuum diffusion method, followed by an analysis of the microstructure and tensile strength of the diffusion layer at different temperatures by scanning electron microscope, energy dispersive spectrometer, X-ray micro area diffractometer and mechanical testing machine. The results show that (γ Fe, Ni) and (Ni, Co) solid solution are formed at the interface of YG20/Ni and Ni/42CrMo steel; meanwhile, carbon atoms diffuse from YG20 and 42CrMo steel terminals to the composite intermediate layer, subsequently forming

E-mail: 1271012855@qq.com

收稿日期: 2022-02-26

基金项目:山东省重点研发计划重大科技创新基金资助项目(2019JZZY010361);湖南省教育厅科研基金资助项目(21B0542)

作者简介:林伟伟(1996-),男,湖南永州人,湖南工业大学硕士生,主要研究方向为硬质合金材料,

通信作者:颜练武(1975-),男,湖南株洲人,湖南工业大学高级工程师,博士,硕士生导师,主要研究方向为硬质合金材料, E-mail: 3269962528@qq.com

carbidesin in the diffusion layer. An analysis has been made of the formation mechanism of composite intermediate phase, combined with the C-Ni-Nb isothermal cross section calculated by phase diagram thermodynamics and the experimental characterization of diffusion layer phase. The phase forming sequence from Ni to Nb end is NbNi₃/NbC, Nb₂C and Nb₇Ni₆. Due to the difference between the thermal expansion coefficients of NbNi₃ and NbC, NbC can be easily peeled off from NbNi₃ matrix, thus forming holes. As the connection temperature increases from 1 150 °C to 1 200 °C, more NbC precipitates, resulting in the increase of holes, which reduces the tensile strength from 40 MPa to 24 MPa with an overall brittle fracture at the NbNi₃+NbC layer.

Keywords: diffusion bonding; cemented carbide; steel; composite diffusion layer

研究概述

硬质合金辊环具有高红硬性、高强度、高耐热 疲性和高耐磨性等优良性能,用其作为轧辊的工作 面,能极大地提高轧制高线和棒材的工作效率^[1-2]。 硬质合金辊环的外径最大值为 520 mm, 辊环的厚度 通常为110 mm。在实际服役过程中,为了保持轧辊 的刚性, 辊环工作面的最大磨削厚度仅为某直径的 10%~15%,还有超过一半的硬质合金未能使用。若 利用钢替代部分硬质合金作为辊环的内衬,则可以 有效避免钨资源的浪费,降低成本。目前连接硬质合 金与钢的方法主要有钎焊^[3-5]和固态扩散结合^[6-8]。 但是钎料在高温下容易发生相变和软化, 难以适应 轧辊的高温、大载荷冲击工作环境^[9]。固态真空扩散 焊接主要通过焊接面的原子相互扩散,利用扩散层 的冶金物理化学反应,最终实现材料的冶金结合, 并且具有连接温度较低、焊件受热面积较小等优点。 但是 WC-Co 硬质合金与钢在热物性参数上存在显著 的差异,尤其是热膨胀系数不匹配(室温下 WC-Co 为 6.42×10⁻⁶/K, 钢为 (12~14)×10⁻⁶/K)。如果对硬 质合金/钢直接扩散焊接,焊缝处极易产生热裂纹, 导致脱焊。此外,硬质合金和钢的扩散易产生脆性化 合物,如M₆C、Fe₃C、FeW和Fe₂W,导致接头性能 急剧下降^[7]。为减少残余应力和有害脆性相的形成, 有必要引入一种中间层。在扩散连接中,通常使用金 属箔片作为中间层,如Ni^[10-11]、Nb^[12]、Ti^[13]、V^[14]、 Ti/Ni^[15] 以及 Ti/Cu^[16] 等。

在现有的金属中,Nb(8.42×10⁻⁶/K)热膨 胀系数介于WC-Co和钢之间,可以有效缓冲硬质 合金/钢接头压力。Ni具有良好的金属延展性, 可缓冲接头的残余应力,且Ni与钢中的Fe和硬 质合金中的Co相互固溶,不会产生脆性金属间 化合物。鉴于此,本研究拟采用Ni-Nb-Ni作为 YG20/42CrMo钢固态真空扩散连接的复合扩散层, 研究不同连接温度对扩散层微观组织结构的形成机 理和和抗拉强度的影响。

2 实验

2.1 材料

YG20硬质合金,株洲硬质合金集团有限公司生产;42CrMo钢,太原钢铁集团有限公司生产;Ni箔(厚0.05 mm)、Nb箔(厚0.1 mm),纯度均为99.95%,均由清河县冠泰金属材料有限公司生产。其中42CrMo和YG20的化学成分如表1所示。

表 1 原材料化学成分

Table 1Chemical composition of raw materials%

Materials	Cr	С	Мо	Ni	Со	Fe	W
42CrMo	1.1	0.4	0.2	0.3	-	97	-
YG20	-	4.9	-	-	20	-	75

2.2 方法

本文采用真空扩散工艺进行扩散连接。连接前对 YG20和42CrMo的接合面依次用240~2000目的砂 纸和金刚石磨盘进行打磨抛光至表面光亮、无明显划 痕。Ni 箔和 Nb 箔用 1500目的砂纸进行打磨。将打 磨后试样在丙酮中超声波清洗 15 min,以去除表面 的油污等杂质。扩散样品以YG20/Ni/Nb/Ni/42CrMo 的顺序组装,如图 1a 所示。将组装好的试样放入真 空管式炉中,在连接过程中真空度小于 10⁻³ Pa,以 10℃/min 升温速率升到 1 150~1 200℃并保温 1 h, 随后炉子以 5℃/min 的速度冷却至 500℃,并炉冷 至室温。从连接试样上截取 26 mm×10 mm×3 mm 的拉伸试样,如图 1b 所示。



拉伸实验在试验机 Instron-3369 上进行,应变速 率为1 mm/min,以5 个拉伸试样强度的算术平均值 作为接头的平均强度。

使用场发射扫描电子显微镜(TESCAN, MIRA3 LMH)、能谱仪(EDS, X-Max20)和X射线衍射仪(XRD, D/MAX RAPID 11R)分析接头断裂前后的微观结构、化学成分和物相组成。

利用相图热力学计算 Fe-Ni、Ni-Co 二元相图和 C-Ni-Nb 三元等温截面,研究扩散层物相形成机理。

3 结果与分析

3.1 温度对扩散层微观结构的影响

图 2 为 1 150, 1 200 ℃下 YG20 和 42CrMo 的扩 散层 SEM-BSE 照片。







b)1200℃ 图 2 不同连接温度下的 YG20 和 42CrMo 的 扩散层 SEM-BSE 图像

Fig. 2 SEM-BSE images of the diffusion layer of YG20 and 42CrMo at different connection temperatures

由图 2 可见,随着连接温度升高,Ni/Nb 扩散层 厚度从 30 μm 增加到 42 μm。扩散层厚度的增加可用 公式(1)^[15] 描述:

$$l^2 = k_0 \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) t , \qquad (1)$$

式中: 1为扩散层厚度; k₀为扩散系数; Q为反应层

生长激活能; R 为摩尔气体常数; T 为扩散温度; t 为连接时间。

由式(1)可知,扩散温度*T*越高,原子的扩散 系数越大,扩散层的厚度越大。

图 3a~3e 为 WC-Co/Ni/Nb/Ni/42CrMo 在 1 200 ℃ 下扩散连接后,扩散层区域的背散射电子照片以及能 谱分析结果,其中图 3b 和 3c 为图 3a 虚线框区域的 放大图像。由图 3b 和 3c 可以看出,YG20/Ni 界面和 Ni/42CrMo 界面的连接良好,未发现裂纹。图 3d 和 图 3e 为图 3b 和 3c 的界面光谱分析结果,由图 3d 和 图 3e 中的元素曲线可知,各元素分布曲线非常平滑, 未形成台阶,表明在 YG20/Ni 和 Ni/42CrMo 扩散层 未形成新相。



a)接头整体界面



b)YG20/Ni界面



c) Ni/42CrMo 界面







图 4 为利用 CSUTDCCI 数据库^[17] 计算得到的 Fe-Ni和 Ni-Co二元相图。由图 4 所示 Fe-Ni和 Ni-Co 相图可以得知, Ni、Fe 在温度超过 930 ℃时无限固溶。这说明在 1 150~1 200 ℃下的扩散连接, Ni/42CrMo 扩散层会形成 (yFe, Ni) 固溶体, YG20/Ni 扩散层会形成 (Ni, Co) 固溶体。









1 200 ℃下 Ni/Nb/Ni 扩散中间层的 SEM-BSE 图像和 EDS 扫描图,其中图 5a 为图 5b 中的虚线框区域的放大图像,从图 5a 中可观察到 YG20/42CrMo 接头均出现了明显的扩散层,图 5c~5d 为图 5a~5b 的EDS 线扫描结果,从图 5c~5d 观察到接头处 Nb、Ni和 C 的吸光度存在较大波动,分布曲线出现明显的台阶,说明出现了不同的中间化合物。



a) Ni/Nb 界面



b)接头整体界面



YG20/42CrMo joint at 1 200 °C

图 6 为扩散连接温度在 1 200 ℃接头 XRD 微区 分析结果,该结果表明,在 Ni/Nb/Ni 扩散中间层处, 生成了不同的金属间化合物 NbNi₃、NbC、Nb₂C 和 Nb₇Ni₆。





图 7a 和 7b 分别为 Nb-C 和 Nb-Ni 的二元相图, 表 2 为扩散连接温度为 1 200 ℃的特征区域元素含量 分析结果。可知图 5b 区域 *A* 含有 Nb(*n*(Nb)=31.1%)、 Ni(*n*(Ni)=50.5%) 和 C(*n*(C)=18.3%)。 由 图 7 可知, 区域 *A* 为 NbNi₃ 和 NbC。区域 *B* 含 有 Nb (*n*(Nb)=63.5%)、Ni(*n*(Ni)=6.5%)和C(*n*(C)=30.0%)。 结合图 7b Ni-Nb 二元相图可知,区域 *B* 为 Nb₂C。区 域 *C* 含 有 Nb(*n*(Nb)=50.0%)、Ni(*n*(Ni)=46.5%) 和 C(*n*(C)=3.5%)。结合图 7b Ni-Nb 二元相图可知, 区域 *C* 为 Nb₇Ni₆。





表 2 图 5 的 A~C 区域扩散层元素含量分析结果

Table 2Element content results of the diffusion regions
marked in areas $A \sim C$ shown in figure 5

区域	物	质的量分数 /%	でならきます	
	Nb	Ni	С	明起初相
A	31.1	50.5	18.3	NbNi ₃ , NbC
В	63.5	6.5	30.0	Nb ₂ C
С	50.0	46.5	3.5	Nb ₇ Ni ₆

为了进一步确定 Ni/Nb/Ni 扩散层的物相形成规 律,利用 CSUTDCCI 数据库,计算得到 C-Ni-Nb 在 1 200 ℃下的等温截面如图 8 所示。

由于碳原子半径较小,扩散速率较快,碳较快分 布在整个扩散层中。简便起见,本文主要讨论 Ni/Nb 的相互扩散。图 8 中虚线箭头所示为 Ni/Nb/Ni 扩散 层的大致扩散路径。在富 Ni 端, Ni 和 Nb 相互扩散, 首先生成了 NbNi₃,随后会析出 NbC 相。由于包含 NbC 相区较窄, NbNi₃中只析出了少量 NbC。NbC 和 NbNi₃热膨胀系数差距较大^[18],导致在抛光过程 中 NbC 从 NbNi₃中剥落,形成了孔洞。随着扩散的 进一步进行,会相继出现 Nb₂C、液相和 Nb₇Ni₆。液 相的出现加速了 Nb₂C 和 Nb₇Ni₆相的长大。



图 8 计算的 C-Ni-Nb 体系 1 200 ℃下等温截面图 Fig. 8 Calculated isothermal section of C-Ni-Nb system at 1 200 ℃

3.2 温度对抗拉强度与断口形貌的影响

拉伸试验表明,当连接温度为1150,1200 ℃时, 接头平均抗拉强度分别为40 MPa和24 MPa。

图 9a 和 9b 分别为 1 150 ℃和 1 200 ℃的连接温 度下的拉伸断口形貌。

由图 9 可见,断口区域能观察到河流形貌,表明接头以脆性断裂模式失效。结合表 3 中 1 和 2 区域分析结果可知,接头均在 Ni₃Nb 层失效。断裂在 Ni₃Nb 层的原因可能是,随着连接温度升高,NbNi₃ 中的 NbC 生成量增大,NbC 与 NbNi₃ 之间较大的热膨胀系数差异,导致形成热裂纹,并成为拉伸断裂源。



a) 1 150 °C

100 μm

b) 1 200 °C

图 9 不同连接温度下扩散连接样品的拉伸断口形貌

Fig. 9 Tensile fracture morphology of diffusion samples at different bonding temperatures

表 3 断口的元素含量

Table 3 Fracture element content

区域	物	物质的量分数 /%				
	Nb	Ni	С	哺走物相		
1	19.24	51.31	29.45	NbNi ₃ , NbC		
2	36.30	33.70	30.00	Nb ₂ C		

4 结论

基于真空扩散连接方法,本文利用 Ni/Nb/Ni 复 合中间层成功连接了 YG20 硬质合金和 42CrMo 钢, 并对不同连接温度下 YG20/42CrMo 接头的微观组织 结构和拉伸强度进行了研究,得出以下结论:

 当连接温度从 1 150 ℃升至 1 200 ℃, Ni/Nb 界面扩散厚度从 30 μm 增加至 42 μm。在 YG20/Ni 和 Ni/42CrMo 钢扩散层形成了 (Ni, Co) 固溶体和 (γFe, Ni) 固溶体。

2) C 从 YG20 与 42CrMo 钢基体两端向 Ni/Nb/ Ni 连接层扩散,并迅速分布于整个中间连接层。Ni/ Nb/Ni 中间扩散层的物相形成规律如下:在富 Ni 端, Ni 和 Nb 相互扩散,生成 NbNi₃,并且在 NbNi₃ 中析 出 NbC;随着扩散的进一步进行,相继生成了 Nb₂C 相、液相和 Nb₇Ni₆相。液相的出现加速了 Nb₂C 相和 Nb₇Ni₆相的长大。

3)当连接温度从 1 150 ℃升高至 1 200 ℃,接头 抗拉强度从 40 MPa 降低到 24 MPa,且均以脆性断 裂模式在 NbNi₃ 层失效。断裂原因可能是随着连接温 度升高,NbNi₃中的 NbC 生成量增大,由于 NbC 与 NbNi₃之间较大的热膨胀系数差异,导致形成热裂纹 并成为拉伸断裂源。

参考文献:

[1] 龙坚战, 王忆民, 袁红梅. 高线轧制用硬质合金辊环

材料的组织与性能 [J]. 硬质合金, 2010, 27(4): 230-235.

LONG Jianzhan, WANG Yimin, YUAN Hongmei. Microstructure and Performance of Carbide Roll for High-Speed Wire Mill[J]. Cemented Carbide, 2010, 27(4): 230–235.

- [2] 刘均贤,韩静涛,张永军.硬质合金轧辊材料的研究 进展[J].中国钨业,2009,24(1):33-35.
 LIU Junxian, HAN Jingtao, ZHANG Yongjun. Research Development of Cemented Carbide Rolls[J].
 China Tungsten Industry, 2009, 24(1): 33-35.
- [3] KALIN B A, FEDOTOV V T, SEVRJUKOV O N, et al. Development of Brazing Foils to Join Monocrystalline Tungsten Alloys with ODS-EUROFER Steel[J]. Journal of Nuclear Materials, 2007, 367/368/369/370: 1218– 1222.
- [4] ZHU W, QIANG J B, WANG Y M, et al. A Ti-Fe-Sn Thin Film Assembly for Joining Tungsten and Reduced Activation Ferritic-Martensitic Steels[J]. Materials & Design, 2017, 125: 55-61.
- [5] DE PRADO J, SÁNCHEZ M, UREÑA A. Evaluation of Mechanically Alloyed Cu-Based Powders as Filler Alloy for Brazing Tungsten to a Reduced Activation Ferritic-Martensitic Steel[J]. Journal of Nuclear Materials, 2017, 490: 188–196.
- [6] JUNG Y I, PARK J Y, CHOI B K, et al. Activities of HIP Joining of Plasma-Facing Armors in the Blanket First-Wall in Korea[J]. Fusion Engineering and Design, 2016, 109/110/111: 448–453.
- [7] CHEHTOV T, AKTAA J, KRAFT O. Mechanical Characterization and Modeling of Brazed EUROFER-Tungsten-Joints[J]. Journal of Nuclear Materials, 2007, 367/368/369/370: 1228-1232.
- [8] OONO N, NOH S, IWATA N, et al. Microstructures of Brazed and Solid-State Diffusion Bonded Joints of Tungsten with Oxide Dispersion Strengthened Steel[J]. Journal of Nuclear Materials, 2011, 417(1/2/3): 253– 256.
- [9] AMELZADEH M, MIRSALEHI S E. Dissimilar Joining of WC-Co to Steel by Low-Temperature Brazing[J]. Materials Science and Engineering: B, 2020, 259: 114597.

- [10] ZHONG Z H, JUNG H C, HINOKI T, et al. Effect of Joining Temperature on the Microstructure and Strength of Tungsten/Ferritic Steel Joints Diffusion Bonded with a Nickel Interlayer[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2010, 210(13): 1805–1810.
- ZHONG Z H, HINOKI T, KOHYAMA A. Effect of Holding Time on the Microstructure and Strength of Tungsten/Ferritic Steel Joints Diffusion Bonded with a Nickel Interlayer[J]. Materials Science and Engineering: A, 2009, 518(1/2): 167–173.
- BASUKI W W, AKTAA J. Investigation of Tungsten/ EUROFER97 Diffusion Bonding Using Nb Interlayer[J].
 Fusion Engineering and Design, 2011, 86(9/10/11): 2585-2588.
- [13] ZHONG Z H, HINOKI T, NOZAWA T, et al. Microstructure and Mechanical Properties of Diffusion Bonded Joints Between Tungsten and F82H Steel Using a Titanium Interlayer[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2010, 489(2): 545-551.
- [14] CAI Q S, LIU W S, MA Y Z, et al. Effect of Joining Temperature on the Microstructure and Strength of W-Steel HIP Joints with Ti/Cu Composite Interlayer[J]. Journal of Nuclear Materials, 2018, 507: 198–207.
- [15] BASUKI W W, AKTAA J. Process Optimization for Diffusion Bonding of Tungsten with EUROFER97 Using a Vanadium Interlayer[J]. Journal of Nuclear Materials, 2015, 459: 217–224.
- [16] CAI Q S, LIU W S, MA Y Z, et al. Influence of Intermetallic Compounds on the Microstructure and Strength Properties of Diffusion Bonded W-Steel Joints Using Ti/Ni Composite Interlayer[J]. Fusion Engineering and Design, 2018, 132: 110–118.
- [17] PENG Y B, DU Y, ZHOU P, et al. CSUTDCC1: A Thermodynamic Database for Multicomponent Cemented Carbides[J]. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials, 2014, 42: 57–70.
- [18] LUCHINI B, SCIUTI V F, ANGÉLICO R A, et al. Thermal Expansion Mismatch Inter-Inclusion Cracking in Ceramic Systems[J]. Ceramics International, 2016, 42(10): 12512–12515.

(责任编辑:申 剑)