

温度对铜膜中间层 W/CuCrZr 热等静压焊接质量的影响

杨发展, 沈丽如, 金凡亚, 许泽金, 董玉英

(核工业西南物理研究院, 四川 成都 610041)

摘要: 采用磁控溅射沉积 40 μm 铜膜作为中间层, 分别在 950、980 和 1050 $^{\circ}\text{C}$ 下通过热等静压 (HIP) 焊接技术制备了国际热核聚变实验堆 (ITER) 计划 W/CuCrZr 偏滤器部件焊接模块, 以考察温度对磁控溅射沉积 40 μm 铜膜作为中间层 W/CuCrZr 偏滤器部件焊接质量的影响。通过扫描电子显微镜 (SEM) 和 EDS 能谱分析焊接界面的形貌和成分, 利用超声波无损探伤 (NDT) 仪对焊接界面缺陷进行了检测, 利用力学拉伸试验机考察了焊接界面的结合强度和 CuCrZr 合金的力学性能。结果表明: 磁控溅射法沉积 40 μm 铜膜作为中间层, 可以有效地提高 HIP 焊接界面质量。特别是在 980 $^{\circ}\text{C}$ 时, 所制备的焊接模块能够满足 ITER 计划对于偏滤器部件连接性能的要求。

关键词: 偏滤器; 磁控溅射; 铜膜; 热等静压焊接

中图分类号: TG457.19

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)12-3972-05

核聚变研究是当今世界科技界为解决人类未来能源问题而开展的重大研究之一。它具有资源无限, 不污染环境, 不产生高放射性核废料等优点, 是人类未来能源的主导形式之一, 也是目前认识到的可以最终解决人类社会能源问题和环境问题、推动人类社会可持续发展的重要途径之一。ITER 计划是目前全球规模最大、影响最深远的国际大科学工程合作项目之一^[1]。

偏滤器是聚变实验装置和未来聚变堆的关键组成部分, 主要起到排出源于聚变等离子体巨大的热流和粒子流, 屏蔽器壁产生的杂质和排出氦灰的作用^[2]。偏滤器部件主要由面向等离子体材料 (PFM)、热沉材料和支撑材料组成。ITER 选择钨作为偏滤器部件的面向等离子体材料, 而热沉材料则选择无氧铜和 CuCrZr 合金等, 不锈钢材料作为支撑部分。偏滤器部件制造技术也是偏滤器的物理和结构设计能否实现的关键, 预期 ITER 偏滤器部件表面的稳态热流密度为 5~10 MW/m^2 , 而在发生等离子体破裂等异常工况时, 偏滤器将承受更为严酷的热负荷^[3]。为了及时有效地转移出沉积在 PFM 表面上的热负荷, 保证其寿命和托卡马克装置的安全运行, 必须采用有效措施把 PFM 材料与热沉材料连接起来组成面向等离子体部件。W 材料以其高熔点、低溅射、不与 H 发生化学反应、H 滞留极低等特性被视为未来聚变堆中最可能全面使用的 PFM^[4]。由于 W 与 Cu (CuCrZr 合金)

热沉材料的热膨胀系数及弹性模量相差极大, 在制备和应用过程中钨/铜界面处会产生较高的热应力, 且 W 与 Cu 既不能相互固溶, 又不能形成金属间化合物, 难以获得良好的结合界面。所以 W 与 Cu (CuCrZr 合金) 热沉材料的连接非常困难, 也是 ITER 工程的关键技术之一。因此有必要筛选和优化目前发展的连接技术, 找出适合偏滤器部件制造的方法和工艺。国内外对部件焊接技术进行了较多的研究, 主要包括 HIP 焊接^[5-7]、钎焊^[8,9]、热径向压制 (HRP)^[10,11]等。HIP 扩散连接属于扩散连接的一种, 与熔化焊、钎焊相比, 在某些方面有其明显的优点, 如焊接温度低于母材的熔点, 形成裂纹的倾向小, 接头强度高。其特点主要表现在如下几个方面: (1) 扩散连接适合于耐热材料、陶瓷、磁性材料及活性金属的连接。特别适合于不同种类的金属与金属或金属与非金属异种材料的连接; (2) 它可以进行内部及多点、大面积构件的连接, 以及电弧可达性不好或用熔焊方法根本不能实现的连接; (3) 它是一种高精密的连接方法, 用这种方法连接后, 工件变形小, 可以实现机械加工后的精密装配连接。因此, 针对偏滤器部件 DOME 部件多采用 HIP 焊接的方式制备模块。

对于钨和铜合金的 HIP 焊接, 许多研究^[6,12-16]通过加入无氧铜中间层来缓解焊接界面的应力和减缓 W 的腐蚀速度。但 OFC 易于氧化, 因此在整个焊接过程中控

收稿日期: 2016-12-10

基金项目: 国际热核聚变实验堆 (ITER) 计划专项 (2011GB110004); 国家青年基金项目 (11305055); 四川省科技厅国际合作项目 (2013HH0044)

作者简介: 杨发展, 男, 1982 年生, 博士, 核工业西南物理研究院, 四川 成都 610041, 电话: 028-82820977, E-mail: swiptc@163.com

制 OFC 的氧化也成为了模块制备的难点之一。基于此,本研究通过 PVD 法在钨和铜合金界面沉积铜膜,通过所沉积的膜来减小界面的应力,提高界面间的结合强度,有效地改善二者间的连接性能。采用 HIP 连接技术与 PVD 法相结合的连接方法,研究在热负荷条件下钨/铜合金的连接性能,以得到最优化的工艺参数,为未来聚变装置的应用和发展奠定基础。

1 实验

本实验采用的材料有 W, CuCrZr, 316 不锈钢。316 不锈钢用于制造不锈钢垫块和包套。钨材料为锻造+热轧的块材,牌号为 W1,其成分(质量分数)如表 1 所示。按照 ITER 计划要求,选择 CuCrZr 合金作为热沉材料,其化学成分(质量分数)如表 2 所示。316 不锈钢则选择符合 ITER 要求的 316L(N)-IG 不锈钢,ITER 要求其杂质含量低,其成分测量为 0.012% C、0.03% Co、0.018% Cu、0.0007% B、<0.01% Ti、<0.01% Nb 和 0.015% P,符合 ITER 的要求。

实验过程中,铜膜在我院自行研制的磁控溅射离子镀膜机上制备,厚度 42 μm。HIP 焊接在 Avure 公司生产的 Pioneer 热等静压机上完成,HIP 焊接工艺参数为(950/980/1050 °C, 120 MPa, 2 h)。

铜膜表面和焊接界面微观形貌以及成分分别采用 Sirion-200 型场发射扫描电子显微镜和 Noran System SIX 能谱仪进行表征。利用瑞格尔公司 RGM-4300 万能材料试验机测试焊接模块的剪切强度和 CuCrZr 合金的拉伸强度;采用中国制造的 NPIC 超声无损探伤检测平台测试焊接模块焊接界面缺陷的存在情况。

2 结果与讨论

2.1 铜膜的形貌和成分分析

图 1 为 W 块表面沉积 Cu 膜后微观组织形貌。由图 1 可以发现,经过磁控溅射法沉积的膜表面组织均匀,光滑而致密。图 2 为 Cu 膜表面通过 EDS 分析的能谱图。从图 2 可以发现,膜主要含有 C 和 Cu 2 种成分。再利

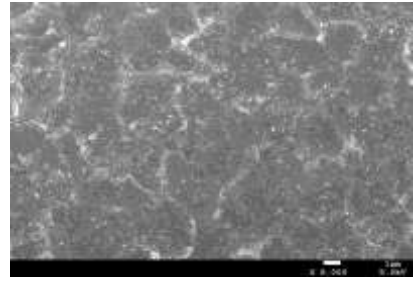


图 1 Cu 膜表面微观组织形貌

Fig.1 Surface morphology of Cu films

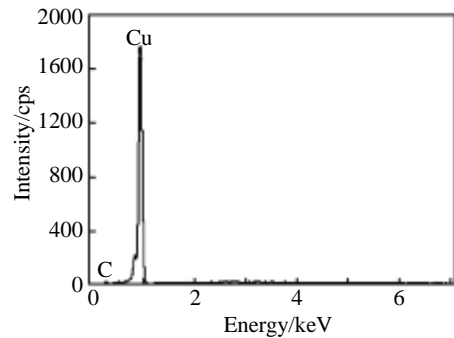


图 2 Cu 膜表面 EDS 能谱图

Fig.2 EDS spectrum of Cu films

用 EDS 点分析膜的表面成分,具体数值如表 3 所示。由表 3 可知,膜含 Cu 质量分数为 99.67%,含 C 质量分数为 0.33%。膜中 C 可能是有暴露在空气吸附含 CO₂ 等含 C 气体造成的。由此说明膜的纯度较高,凸显了 PVD 制备 Cu 膜作为中间层的优势。

2.2 焊接界面形貌和成分分析

对 950, 980 和 1050 °C 3 种温度下 HIP 扩散焊接后的焊接界面利用 EDS 线扫描进行分析,如图 3 所示。由图 3 可以发现,W 和 PVD 铜的界面连接完整,没有裂纹、空隙等缺陷存在。由此说明 W 和 Cu 具有良好的焊接界面。同时,图 4 为 W 和 PVD 铜的 EDS 线扫描能谱图,由图可以发现,3 种温度下都存在 W 与 Cu 的扩散区域,且扩散区域没有明显的区别。

2.3 焊接界面剪切强度分析

为了考核焊接界面的力学性能,进一步地分析了焊接界面的结合强度。剪切试验分别对每种工艺制备

表 1 钨材料的化学成分

Table 1 Chemical composition of the tungsten (ω/%)

W	Ca	Fe	Mo	Ni	Si	C	N
Bal.	0.002	0.002	0.005	0.003	0.002	0.005	0.002

表 2 铜合金的化学成分

Table 2 Chemical composition of the CuCrZr alloys (ω/%)

Cu	Cr	Zr	Impurities
Bal.	0.702	0.128	Total < 0.1

表 3 铜膜成分分析

Table 3 Chemical composition of the Cu films

Element	ω/%	at%
C K	0.33	1.73
Cu K	99.67	98.27
Total	100	100

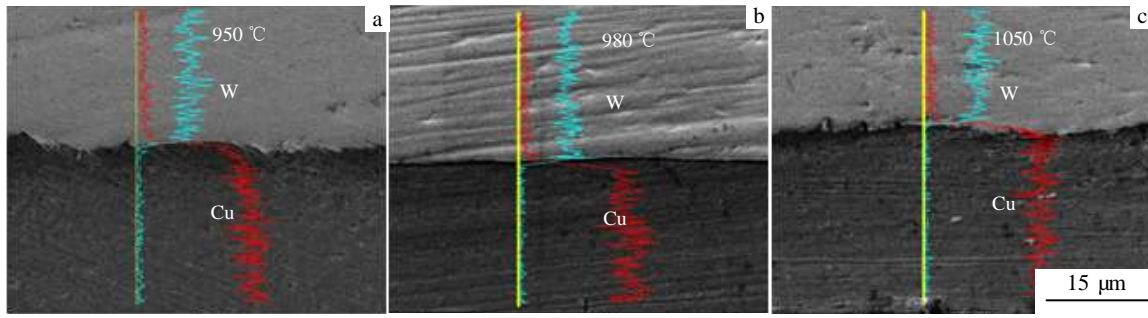


图 3 3 种温度下 W/CuCrZr 焊接界面微观形貌和元素分析

Fig.3 Interface microstructures of W/CuCrZr joined with Cu (42 μm) interlayer by HIP at different temperatures: (a) 950 °C, (b) 980 °C, and (c) 1050 °C

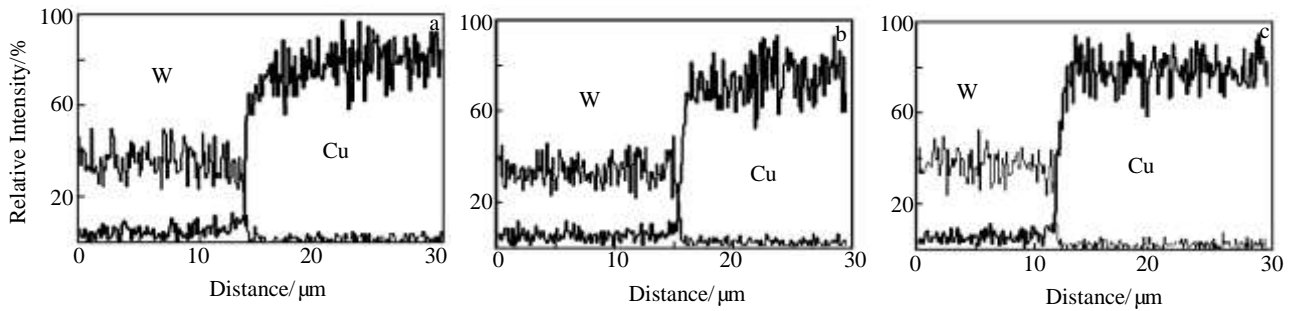


图 4 3 种温度下 HIP 焊接界面 EDS 线扫描图

Fig.4 EDS line scanning of interface of W/CuCrZr joined with Cu (42 μm) interlayer by HIP at different temperatures: (a) 950 °C, (b) 980 °C, and (c) 1050 °C

5 个试样，取 5 次测试的平均值，以避免测试的偶然性。测试后的试验值如表 4 所示。由表 4 可以发现，3 种温度下，焊接结合界面都具有较高的结合强度，特别是在温度为 1050 °C 时，钨和铜合金的剪切强度最大，达到了 191 MPa。950 °C 时，钨和铜合金的剪切强度最小，为 156 MPa。同时，通过剪切试验后断裂的位置可以得出，3 种温度下，剪切试验后试样的断裂位置也不相同。在 950 °C 时，部分断裂发生在靠近界面处的钨材料本身和部分发生在钨材料和 PVD 铜的界面处。当温度为 980 °C 时，断裂位置一部分发生在靠近界面处的钨材料侧，一部分发生在靠近界面处的铜合金侧。当温度为 1050 °C 时，断裂位置发生的位置和 980 °C 时类似，只是 1050 °C 时，发生在钨侧的断裂要略多于 980 °C 时的情况。综合 3 种温度的断裂位置分析可知，在 3 种温度下，焊接界面都具有较好的焊接强度。在 1050 °C 时，其焊接强度优于其它 2 种温度下的焊接强度。且在 3 种温度下，随着温度的升高，剪切强度值变大。造成这种结果的原因是随着温度的升高，材料的塑性变形更加容易，扩散系数变大，使界面处接触更加紧密，加快了晶界迁移和微孔的消除，元素间扩散速度加快，同时有利于体积扩散的发生，从而形成可靠的结合界面。当温度达到了 1050 °C 时，

温度已经接近纯铜的熔点（1080 °C），此种情况，焊接界面处的铜材料具有更好的塑性变形，流动性以及和钨材料的润湿性更好，有利于形成良好的焊接界面。但是温度也不能过高，过高的温度对母材的各项性能影响较大，同时也会产生较大的变形，甚至产生较大的界面焊接应力。从润湿性的角度进行分析可知，润湿方程 ($\sigma_{sg} = \sigma_{sl} + \sigma_{lg} \cos \theta$) 中各界面自由能均为温度的函数，对于不同的物质，界面自由能均不能和同一温度的函数成比例，因而润湿角与温度有着内在联系。李大圣等^[18]对钨和铜合金的润湿性进行了研究，研究发现，随着温度的升高（研究的温度均在 1350 °C 以下），钨和铜合金之间的润湿性增强。

2.4 超声波 NDT 分析

表 4 钨和铜合金焊接后剪切强度结果

Table 4 Results of shear strength for W and CuCrZr alloy by HIP

Temperature/°C	Shear strength/MPa	Fracture location
950	156	W side, PVD 40 μm Cu/W
980	167	PVD 40 μm Cu/CuCrZr and W side
1050	191	PVD 40 μm Cu/CuCrZr and W side

2.4.1 标准参考试块的检测

HIP 扩散焊接后的模块进行超声波 NDT，以考察焊接界面的连接情况。超声波 NDT 之前先对在焊接界面处具有人工缺陷（平底孔）的标准参考试块进行检测，以调整仪器的灵敏度以及用来比较测定缺陷的大小和定位。标准参考试块的制备一般是通过对焊接后的试块采用电火花加工方式从铜合金底部打孔加工人工缺陷，孔深正好加工到 W 与铜合金界面处。根据 ITER 标准，当焊接界面不出现直径大于 $\Phi 2$ mm 的缺陷即为焊接超声波 NDT 结果合格。测试中采用的标准参考模块分别加工有 $\Phi 1.5$ 、 $\Phi 2.0$ 、 $\Phi 2.5$ 、 $\Phi 3$ 、 $\Phi 4$ 、 $\Phi 5$ mm。

2.4.2 超声波 NDT 结果分析

实验分别对标准参考试块和 HIP 后的 3 个模块进行了超声波 NDT 分析。图 5 为标准参考试块的超声波 NDT 检测图，图中黑色不规则形状即为缺陷，其中由上至下左边 2 个缺陷对应的尺寸分别为 $\Phi 3$ 和 $\Phi 4$ mm，右边 3 个缺陷分别对应的尺寸分别为 $\Phi 5$ 、 $\Phi 2.0$ 和 $\Phi 2.5$ mm。超声波检测设备未能检测出位于 $\Phi 3$ 和 $\Phi 4$ mm 之间的 $\Phi 1.5$ mm 大小的缺陷，检测到的最小缺陷为 2 mm，所以图中只有 5 个不同尺寸的缺陷。

图 6 为超声波 NDT 的实验结果。频率为 10 MHz 的探头以 1 mm/s 的速度以图示的位置左右移动。由图 6 可以发现，经过 HIP 焊接后，在 W 和铜合金的界面处没有发现大于 2 mm 的缺陷，说明焊接界面完好。ITER 要求，对于 W 和铜合金的焊接，在界面不允许出现大于 2 mm 的缺陷存在。因此经过 HIP 焊接的模块在 UNDT 实验中，3 种温度下都能满足 ITER 项目的要求。

2.5 CuCrZr 合金的力学性能

在 HIP 扩散焊接后的模块上截取 CuCrZr 合金，测试其拉伸强度。拉伸试样根据 GBT228-2002 国家标准而设计，见图 7。图 8 为 CuCrZr 合金 980 °C HIP

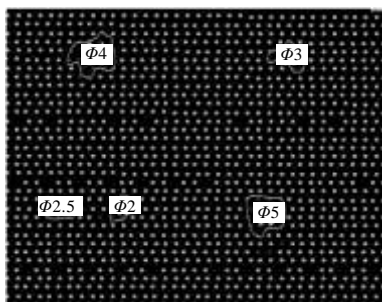


图 5 标准试块超声波 NDT 的检测结果

扩散焊接后拉伸前后的试样对比图以及拉伸曲线。由图可知，CuCrZr 合金的抗试样发生了韧性断裂，没有出现明显的屈服阶段曲线，因此屈服强度以 $\sigma_{0.2}$ 代替。表 5 列出了 CuCrZr 合金 HIP 扩散焊接后的抗拉伸强

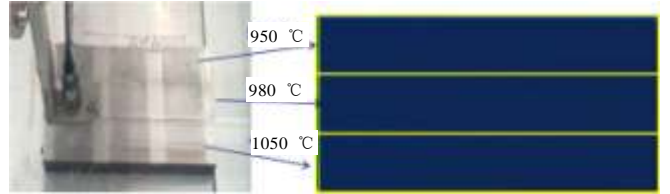


图 6 试块的 UNDT 实验结果

Fig.6 Ultrasonic NDT results of the W/CuCrZr interfaces joined by HIP

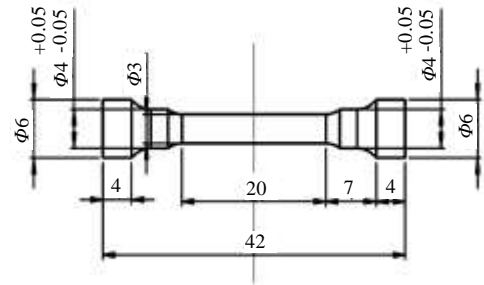


图 7 拉伸试样设计尺寸

Fig.7 Test specimen for tensile test

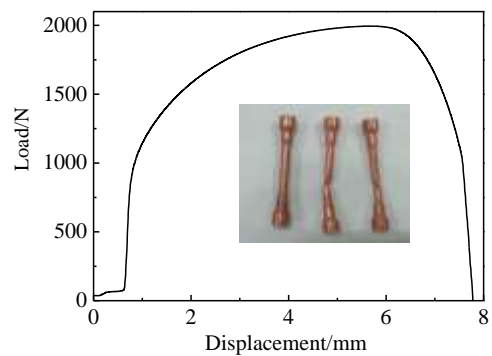


图 8 980 °C HIP 后 CuCrZr 合金试样拉伸前后对比图和拉伸曲线

Fig.8 CuCrZr alloy samples before and after tensile test and tensile curve

表 5 CuCrZr 合金 HIP 后的力学性能

Table 5 Room temperature tensile properties after HIP

Temperature/°C	Ultimate tensile strength/MPa	Yield strength, $\sigma_{0.2}$ /MPa	Total elongation/%
950	291	186	36
980	285	180	31
1050	264	157	24

ITER requirement	280	175	15
------------------	-----	-----	----

度、屈服强度和延伸率。由表 5 可知, 随着 HIP 扩散焊接温度的升高, CuCrZr 合金的抗拉伸强度、屈服强度和延伸率降低, 且在 1050 °C 时, CuCrZr 合金的抗拉伸强度和屈服强度已经不能满足 ITER 的要求。这种力学性能的变化与晶粒的长大和成分的偏析是密切相关的。

3 结 论

1) 分别在 950, 980 和 1050 °C, 120 MPa 下保温 2 h, 然后迅速降温到 475 °C 保温 2 h 后随炉冷却的 HIP 扩散焊接工艺可以制造具有良好焊接界面的模块。

2) 3 种 HIP 扩散焊接工艺下的焊接界面处的超声波 NDT 分析没有发现大于 $\Phi 2$ mm 的缺陷, 满足 ITER 对焊接后模块 NDT 检测接收标准。

3) 3 种工艺下的 CuCrZr 合金的力学性能都发生了变化, 950 和 980 °C HIP 扩散焊接后的微观组织和力学性能都能满足 ITER 的要求, 1050 °C HIP 扩散焊接后 CuCrZr 合金的抗拉伸强度和屈服强度已经不能满足 ITER 的要求。

参考文献 References

- [1] Li Jianfeng(李建峰), Zhang Pingxiang(张平祥), Liu Xianghong(刘向宏) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2009, 38(2): 263
- [2] Villari R, Barabash V, Escourbiac F *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2013, 88(9-10): 2006
- [3] Tivey R, Ando T, Antipenkov A *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 1999, 46(2-4): 207
- [4] Park J Y, Jung Y I, Choi B K *et al. Journal of Nuclear*

Materials[J], 2013, 442(1-3): S541

- [5] Hirai T, Escourbiac F, Carpentier-Chouchana S *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2013, 88(9-10): 1798
- [6] Saito S, Fukaya K, Ishiyama S *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2002, 307-311: 1542
- [7] Roedig M, Kuehnlein W, Linke J *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2002, 61-62: 135
- [8] Singh K P, Pandya S P, Khirwadkar S S *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2011, 86(9-11): 1741
- [9] Litunovsky N, Alekseenko E, Makhankov A *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2011, 86(9-11): 1749
- [10] Visca E, Libera S, Mancini A *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2007, 82(15-24): 1651
- [11] Visca E, Pizzuto A, Gavila P *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2013, 88(6-8): 571
- [12] Visca E, Escourbiac F, Libera S *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2009, 84(2-6): 309
- [13] Wu J H, Zhang F, Xu Z Y *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2004, 385(1-2): 59
- [14] Li-Puma A, Richou M, Magaud P *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2013, 88(9-10): 1836
- [15] Richou M, Missirlian M, Riccardi B *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2011, 86(9-11): 1771
- [16] Giniatulin R, Gervash A, Komarov V L *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 1998, 39-40: 385
- [17] Li Dasheng(李大圣). *Thesis for Master*(硕士论文)[D]. Xi'an: Xi'an University of Technology, 2006

Effects of Hot Isostatic Pressing Joining Temperature on Copper Coating as the Interlayer

Yang Fazhan, Shen Liru, Jin Fanya, Xu Zejin, Dong Yuying
(Southwestern Institute of Physics, Chengdu 610041, China)

Abstract: The international thermonuclear experimental reactor (ITER) project W-Cu divertor component model was made by a hot isostatic pressing (HIP) diffusion welding method under three HIP diffusion welding processes with the temperature of 950, 980 and 1050 °C, and the model was studied by analyzing a module using the magnetron sputtering method to deposit a 40 μm -thick copper coating as the interlayer. This paper aimed to study the effect of the magnetron sputtering method to deposit a 40 μm -thick copper coating as the interlayer of W-Cu divertor component model properties. The morphology and composition of the tungsten and Cu-Cr-Zr alloy joints were investigated by SEM and EDS, the joint defects were detected by ultrasonic non-destructive testing (NDT) equipment, and the bond strength of joints were measured by mechanical tensile tester. The results show that a 40 μm -thick copper coating as the interlayer, which is deposited by the magnetron sputtering method, can significantly improve the properties of hot isostatic pressing joining. In particular, the welding module prepared at 980 °C meets fully the requirements of the ITER divertor.

Key words: divertor; magnetron sputter; copper coating; hot isostatic pressing

Corresponding author: Yang Fazhan, Ph. D., Southwestern Institute of Physics, Chengdu 610041, P. R. China, Tel: 0086-28-82820977, E-mail: swiptc@163.com