

电子束选区熔化成形纯钨的显微组织与晶体取向

杨广宇¹, 杨鹏伟², 刘楠¹, 杨坤¹, 贾亮¹, 许忠国¹, 王建¹, 汤慧萍¹

(1. 西北有色金属研究院 金属多孔材料国家重点实验室, 陕西 西安 710016)

(2. 东北大学, 辽宁 沈阳 110819)

摘要: 采用增材制造技术中的电子束选区熔化成形方法制备了高致密度纯钨试件, 分析了电子束选区熔化成形纯钨的传热过程和显微组织特点, 重点研究了在几种热传导的共同作用下, 纯钨的显微组织特点和晶体的取向分布。结果表明, 电子束选区熔化成形纯钨的显微组织为以外延生长的方式形成的柱状晶。在样品内部, 沿成形方向向下为最主要的热传导方向, 温度梯度最大, 柱状晶生长方向与热流方向相反, 形成完全竖直生长的柱状晶; 在样品外侧面, 沿成形方向向下的热传导和向侧面粉末床的热传导共同作用, 使得热传导的方向与成形方向出现一定偏差, 因此柱状晶组织与成形方向呈 30°~45°夹角。同时, 电子束选区熔化成形纯钨沿着成形方向, 形成[111]和[100]方向的择优取向。

关键词: 增材制造; 电子束选区熔化成形; 纯钨; 显微组织

中图分类号: TG146.4⁺11

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2019)08-2580-05

钨作为一种重要的难熔金属材料, 具有高熔点、高耐热冲击性、高热导率、低膨胀系数、低蒸气压、良好的抗辐照性能等特点, 在航天航空、核工业、化工及其它极端环境领域有着极其重要应用^[1,2]。然而, 由于钨具有较高的熔点和韧-脆转变温度, 使其在成形上存在一定困难。通常, 钨零部件采用粉末冶金结合热加工的方法制备, 但常规烧结态钨因存在密度低, 强度低, 塑性差, 杂质含量难以控制等缺点, 应用范围受到很大限制, 而经过挤压、轧制等热加工后的钨易产生再结晶脆化等多种问题^[3,4]。同时, 在实际应用中, 零部件的结构往往比较复杂, 通常有曲面、弯曲管道、孔、槽等特征, 传统制备方法也难以实现。为克服传统成形方法的不足, 有必要采用一些新的成形技术。

近年来快速发展的金属增材制造技术(或 3D 打印技术)是利用高能热源熔化金属粉末, 通过逐点-逐线-逐层堆积的方法实现三维实体零件的直接制造, 具有无模具、近净成形的优点。可成为高熔点钨材制备的一个有效的途径。目前该技术在高温合金、钛合金等复杂零件制造方面已经实现工程化应用^[5-7], 但增材制造钨及钨基合金方面的研究开展得较晚, 采用的多为增材制造技术中的激光选区熔化成形方法, 但是由于激光的能量利用率相对较低, 较难实现高熔点纯钨零件的全致密化, 因此, 大多数研究是以含有 Ni、

Fe、Cu 等元素的高比重钨基合金为研究对象, 利用低熔点元素液相烧结的方式成形^[8-14], 鲜少有关于增材制造纯钨材料报道, 已报道的结果显示^[15-17], 球化现象和热应力引起的开裂现象明显。电子束选区熔化成形是一种以高能电子束为能量源的增材制造工艺, 电子束能量可达 3 kW, 因为不存在反射问题, 能量利用率较高, 同时, 电子束偏转为磁控偏转, 电子束最大扫描速度可达 8000 m/s, 可实现粉末床快速预热, 预热温度可达 1000 °C 以上, 可有效减少因温度梯度产生的热应力, 避免裂纹产生。本研究采用电子束选区熔化成形技术制备了纯钨试样, 初步探索了在多层反复热循环的特殊热力场条件下成形材料的组织特征, 以期对电子束选区熔化成形纯钨的性能调控起指导作用。

1 实验

本研究以纯钨金属粉末为原料, 主要间隙元素和杂质元素含量见表 1。粉末为多面体颗粒(如图 1 所示), 松装密度为 9.16 g/cm³, 流动性为 10.52 (s/50 g), 粒度为 30~50 μm。

电子束选区熔化成形过程为: 首先, 绘制 10 mm × 10 mm × 5 mm 试样块模型, 通过分层软件将三维模型进行切片, 每层厚度为 0.05 mm。将所得切片数据导入 Sailong S1 电子束选区熔化成形设备中, 保证成

收稿日期: 2018-08-27

基金项目: 科学挑战专题(TZ2018006-0302-01); 国家自然科学基金(51627805)

作者简介: 杨广宇, 女, 1985 年生, 硕士, 高级工程师, 西北有色金属研究院金属多孔材料国家重点实验室, 陕西 西安 710016, 电话: 029-86231095, E-mail: yanggy0403@163.com

表 1 纯钨金属粉末化学成分

Table 1 Chemical composition of pure tungsten powder ($\omega/\%$)						
W	O	C	Fe	Si	K	Na
Balance	0.017	0.005	0.01	0.002	<0.002	<0.002

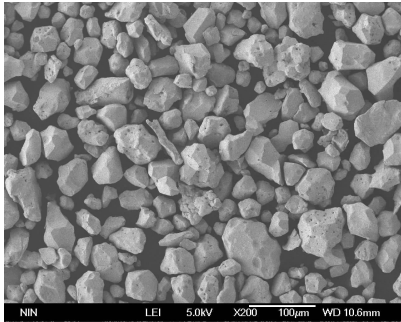


图 1 纯钨金属粉末形貌

Fig.1 Morphology of pure tungsten powder

形腔真空度高于 1×10^{-2} MPa。之后，将底板预热到 500 °C，成形开始时，金属粉末从两侧粉箱中流出，刮板在成形底板上铺展一层厚度约为 0.05 mm 粉末，电子束根据切片层数据信息进行选择性的熔化，熔化完成后成形底板下降一定高度，重复上述过程，逐层叠加最终完成试样制备。熔化过程中，电子束扫描电流为 12 mA，扫描速度为 100 mm/s，扫描线间距为 0.05 mm。成形过程中采用十字交叉的扫描方式，如图 2 所示。

采用 JSM-6460 扫描电子显微镜(SEM)对成形样品的上表面形貌进行观察。并将试样分别沿垂直于成形方向（如图 2 所示 XY 平面方向）和平行于成形方向（如图 2 所示 XZ 平面方向）进行切割，打磨，抛光。采用 HF:HNO₃=8:1 的腐蚀液进行腐蚀后对两个面进行显微组织观察。然后重新将样品进行电解抛光，电解抛光条件：甲醇和浓硫酸体积比 7:1 的混合液作为电解液，电压为 14 V，抛光时间为 5~8 s。利用 JSM-6460

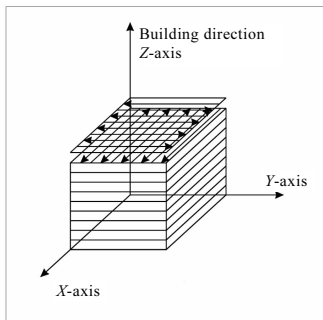


图 2 电子束扫描方式示意图

Fig.2 Schematic diagram of electron beam scanning strategy

扫描电子显微镜(SEM)配备的EBSD探头及Inca取向分析软件分别对两个面组织特点及取向分布进行分析。

2 结果与讨论

2.1 电子束选区熔化成形纯钨显微组织及形成机制

图 3 所示为电子束选区熔化成形纯钨试块在平行于成形方向上(XZ 平面方向)的显微组织，如图可以看出，样品内无明显气孔、裂纹、夹杂缺陷，以排水法对样品密度进行测试，致密度可达 99.5%。宏观上，样品 XZ 平面上为沿着成形方向的柱状晶，贯穿多个沉积层，在层间部位并没有发生明显的转向生长，柱状晶尺寸为 50~100 μm，发生了一定的粗化，这主要是因为钨的熔点较高(3400 °C)，在整个成形过程中，成形腔体长期处于高温状态(底板温度保持在 1000 °C左右)，这也是纯钨样件可以避免裂纹生成的主要原因之一。通过对样品 XZ 平面不同区域观察可以看出，中间位置组织为完全垂直于底面垂直生长的柱状晶，边部同样为柱状晶组织，但是与成形方向成 30°~45° 倾角。图 4 为样品 XY 方向的上表面的显微形貌。在成形样品上表面，可以看到明显的沿着特定方向排布的相互重叠的扫描线，扫描线之间的搭接率约为 50%，表面经打磨后显示出典型的等轴晶形貌，并没有沿特定方向排列。

纯金属的晶体长大主要与传热有关，电子束选区熔化成形过程中热的传递方式主要包括热的传导、对流和辐射等，对于纯钨金属来说，因为钨的熔点高，导热性能好，成形过程中热的传播以热传导为主，增材制造过程是个熔池细小，热源移动的过程，特殊的加热方式和温场环境，使得热的传导分为几种方式：一是液体金属→下方已成区域→成形底板；二是液体金属→下方已成区域-周围粉床；三是液体金属→同一扫描平面上已凝固的区域(如图 5 中箭头所示几种热的传导方向)，即熔池热量的传导同时存在扫描层上的平面散热和沿成形高度向上的散热。增材制造合金的柱状晶主要以外延生长的方式形成，即成形过程中在底板处铺展一层粉末，在快速凝固条件下，形成一层等轴晶组织，之后的逐层累加过程均以该层等轴晶组织为基体，沿着热流传导相反的方向外延生长。根据图 5 中热传导示意图和图 3、4 显示的显微结构特点可以看出，在图 5 中区域 A，沿沉积高度方向的温度梯度最大，在高的温度梯度的驱使下，固-液界面将继续以沿着成形方向推进，使柱状晶外延生长。柱状晶的生长方向大致与基体结合面垂直；图 5 中的区域 B，热的传导并不是单一成形高度向上的单向散热为主导，而是向粉床散热和沿成形高度散热综合作用的

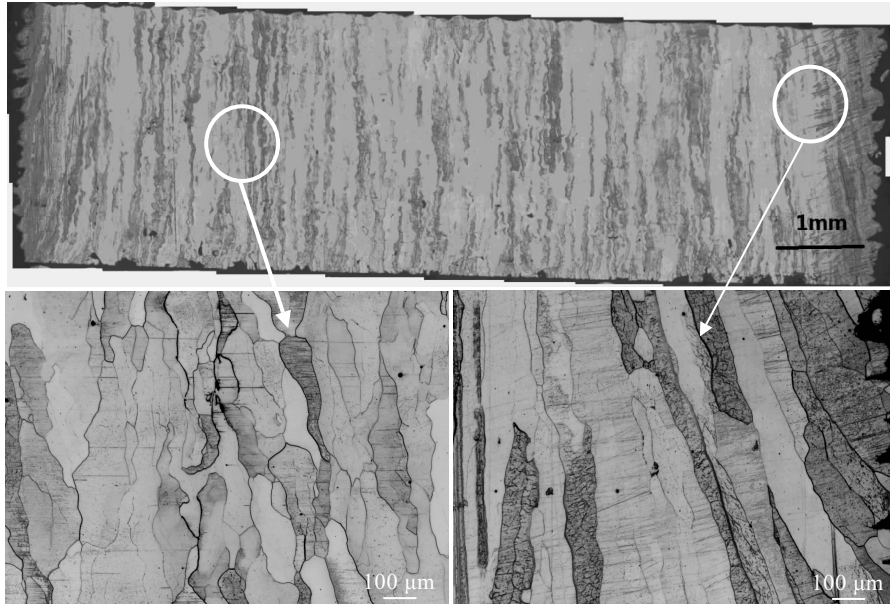


图 3 电子束选区熔化成形纯钨样品在 XZ 平面上的显微组织
 Fig.3 Microstructures of SEBM pure tungsten samples on the XZ plane

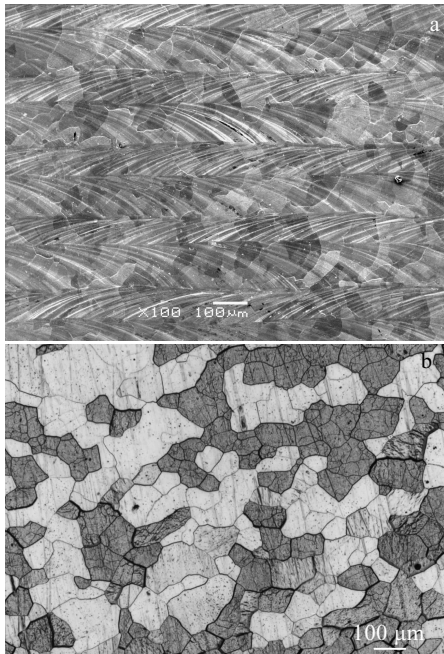


图 4 电子束选区熔化成形纯钨样品在 XY 方向的上表面扫描线形貌和显微组织
 Fig.4 Scan line (a) and microstructure (b) of SEBM pure tungsten samples on the XY plane

结果。在此传热方式作用下，形成边部具有一定倾角的柱状晶组织。而在扫描平面内，细小熔池在平面内各方

向散热均匀，温度梯度相差不大，因此形成等轴晶组织。

2.2 电子束选区熔化成形纯钨取向分析

图 6 为电子束选区熔化成形纯钨试样在 XY 平面方向和 XZ 平面方向的 EBSD 取向成像图。如图可以看出，XY 平面上，晶粒为等轴形态，由图 7a 中极图可以看出，沿 {111} 和 {100} 晶面族的取向密度较大，即电子束选区熔化成形的纯钨样品成形方向，具有明显的 [111] 和 [100] 择优取向。而在 XZ 平面上，晶粒为

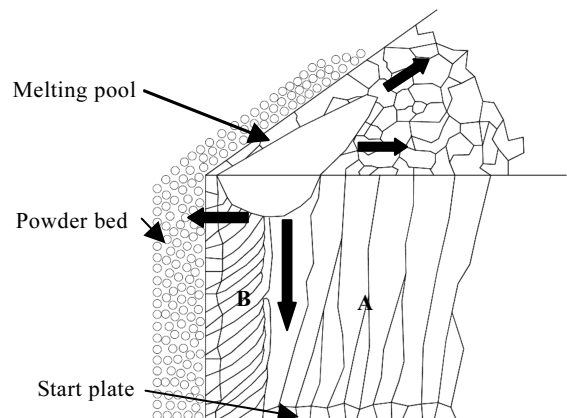


图 5 电子束选区熔化成形过程中热传导与显微组织形成示意图
 Fig.5 Schematic diagram of heat conduction and microstructure formation during the SEBM process

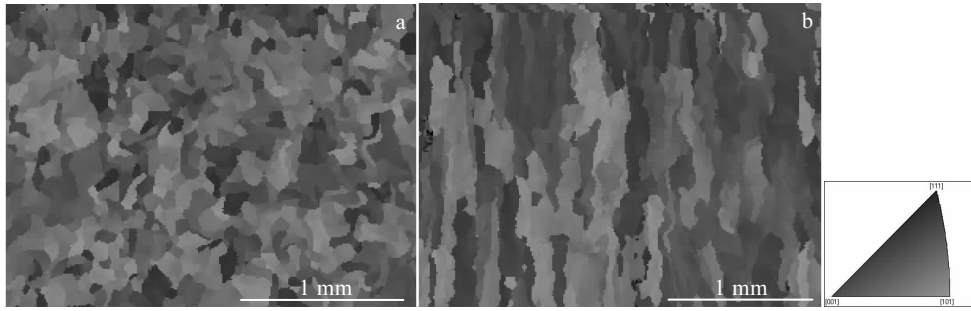


图 6 电子束选区熔化成形纯钨样品 XY 平面和 XZ 平面的 EBSD 取向成像图
 Fig.6 EBSD maps of SEBM pure tungsten samples on XY (a) and XZ (b) planes

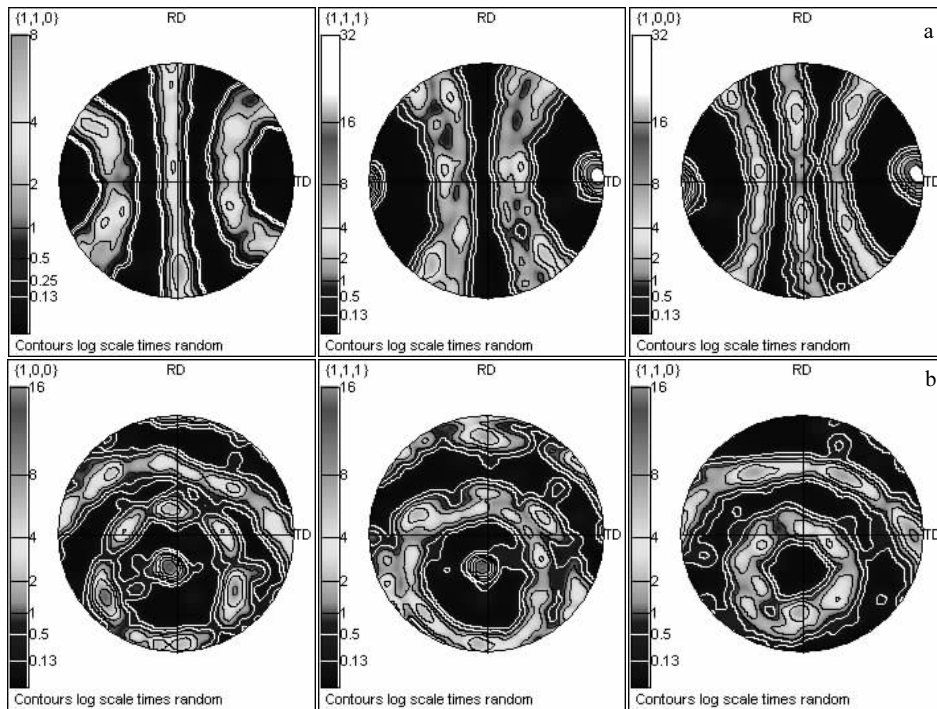


图 7 电子束选区熔化成形纯钨样品在 XY 和 XZ 平面的极图
 Fig.7 Pole figures of SEBM pure tungsten samples on XY (a) and XZ (b) planes

明显柱状晶形态，晶粒取向更为分散，图 7b 极图显示，各晶面族取向密度分布均匀，取向分布随机。

根据本研究中电子束成形纯钨样品的显微组织特点和晶粒取向关系可以看出：在成形过程中，柱状晶形成的初始位置有 2 种，一是样品与底板接触的位置，二是成形样品与周围粉床接触的位置（如图 5 所示），在成形过程中，这 2 种的粉末在电子束的作用下，全部或者部分熔化，随后细小的熔池快速凝固，随机生成不同取向的晶粒。柱状晶会在之后的逐层生长过程中以外延生长的方式生长，那些[111]和[100]晶体学方向与局部热流方向平行的基材晶粒在后续的逐层沉积的过程会生长，那些[111]和[100]晶体学方向与局部热

流方向偏离较大的晶粒，则大部分会停止长大。在这种晶粒之间竞争机制下，只有那些具有[111]和[100]晶体学方向与局部热流方向平行的晶粒会快速生长，其他部分晶粒将会被淘汰。有文献报道称，以粉床激光法制备的纯钨的晶粒取向为随机分布^[17]，这与本研究的结果略有不同，这主要是因为，电子束较激光而言，能量更高，熔化穿透深度更深，单层熔化时，对已凝固层会有很明显的重熔作用，晶体的外延生长作用更明显。在 XZ 平面上，晶粒的择优取向并不明显，这主要是因为电子束在扫描平面内以 S 形轨迹进行扫描，同时层与层之间扫描线的扫描方向会旋转 90°，所以，这种扫描线方向不断改变，使得在扫描平面上的热流传输

方向不停转变,使得晶粒不会沿某一特定的方向排布。

3 结 论

1) 采用电子束选区熔化方法成形了金属纯钨试样,样品致密度可达 99.5%,裂纹等成形缺陷可得到有效控制。

2) 由于钨的熔点和导热系数均较高,因此在成形过程中,熔池、已成形区域、粉末床、成形底板彼此之间会产生复杂的热传导过程,在复杂温度场的作用下,电子束选区熔化成形纯钨试样形成外表面为弯曲柱状晶,内部为垂直柱状晶的典型组织。

3) 电子束选区熔化成形纯钨的晶粒以外延生长的方式生长,通过晶粒之间的竞争,那些[111]和[100]晶体学方向与局部热流方向平行的基材晶粒在后续的逐层沉积的过程会长大形成柱状晶,形成沿着成形方向的择优取向。

参考文献 References

- [1] Lassner E, Schubert W D. *Tungsten: Properties, Chemistry, Technology of the Element, Alloys and Chemical Compounds* [M]. New York: Kluwer Academic/Plenum Publishers, 1999: 20
- [2] Antolini E, Gonzalez E R. *Applied Catalysis B: Environmental* [J], 2010, 96(3-4): 245
- [3] Piotter V, Zeep B, Norajitra P *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2008, 83(10-12): 1517
- [4] Zeep B, Norajitra P, Piotter V *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2007, 82(15-24): 2660
- [5] Murr L E, Martinez E, Gaytan S M *et al. Metallurgical and Materials Transactions A*[J], 2011, 42(11): 3491
- [6] Wauthle R, van der Stok J, Yavari S A *et al. Acta Biomaterialia*[J], 2015, 14: 217
- [7] Ngo T D, Kashani A, Imbalzano G *et al. Composites Part B: Engineering*[J], 2018, 143: 172
- [8] Zhang D Q, Cai Q Z, Liu J H *et al. Journal of Materials Engineering and Performance*[J], 2011, 20(6): 1049
- [9] Zhang D Q, Cai Q Z, Liu J H *et al. The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*[J], 2013, 67(9-12): 2233
- [10] Wang M B, Li R D, Yuan T C *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2018, 70: 9
- [11] Wang X, Wraith M, Burke S *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2016, 56: 145
- [12] Li R D, Liu J H, Shi Y S. *Powder Metallurgy*[J], 2010, 53(4): 310
- [13] Li R D, Shi Y S, Liu J H *et al. The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*[J], 2010, 48(5-8): 597
- [14] Wang Pan(王攀), Liu Tianwei(刘天伟), Wang Shugang(王述钢) *et al. Laser Technology(激光技术)*[J], 2016, 40(2): 254
- [15] Zhou X, Liu X H, Zhang D D *et al. Journal of Materials Processing Technology*[J], 2015, 222: 33
- [16] Enneti R K, Morgan R, Atre S V. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2018, 71: 315
- [17] Iveković A, Omidvari N, Vrancken B *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2018, 72: 27

Microstructure and Crystal Orientation of Pure Tungsten Fabricated by Selective Electron Beam Melting

Yang Guangyu¹, Yang Pengwei², Liu Nan¹, Yang Kun¹, Jia Liang¹, Xu Zhongguo¹, Wang Jian¹, Tang Huiping¹

(1. State Key Laboratory of Porous Metal Materials, Northwest Institute for Nonferrous Metal Research, Xi'an 710016, China)

(2. Northeastern University, Shenyang 110819, China)

Abstract: Pure tungsten specimens were prepared by additive manufacturing of selective electron beam melting (SEBM). The heat transfer process during SEBM and microstructure characteristics of pure tungsten were analyzed. The results show that the microstructure is columnar crystal grown in the form of epitaxial growth. In the inner side of the sample, the heat conduction along the building direction of the sample is dominant. The columnar crystal growth direction is opposite to the heat flow direction, forming a cylindrical crystal with complete vertical growth. In the outer side of the sample, the heat conduction are the joint action of conduction along the building direction and conduction to the powder bed, making the direction of the heat conduction deviate from the building direction, so the columnar crystal is 30°~45° angle with the building direction. Furthermore, the preferred orientation of [111] and [100] is formed along the building direction in the SEBM pure tungsten.

Key words: additive manufacturing; selective electron beam melting (SEBM); pure tungsten; microstructure

Corresponding author: Yang Guangyu, Master, Senior Engineer, State Key Laboratory of Porous Metal Materials, Northwest Institute for Nonferrous Metal Research, Xi'an 710016, P. R. China, Tel: 0086-29-86231095, E-mail: yanggy0403@163.com