

增材方向对激光粉末床熔融钨材料 抗高热负荷性能的影响

李恺伦¹, 陈金瀚¹, 赵聪聪², 邢磊磊¹, 王建豹³, 陈哲³,
练友运³, 封范³, 刘翔³, 刘伟¹, 沈志坚¹

(1. 清华大学, 北京 100084)

(2. 季华实验室, 广东 佛山 528000)

(3. 核工业西南物理研究院, 四川 成都 610041)

摘要: 激光粉末床熔融 (LPBF) 作为一种新兴的增材制造技术, 为未来聚变堆偏滤器 mono-block 的制备提供了新的成形方法。本研究利用 LPBF, 采用水平增材和垂直增材 2 种方式对纯钨样品进行了制备。研究发现, 在 15 MW/m^2 的热负荷下, 垂直增材样品发生了明显的熔化和飞溅现象, 水平增材样品只发生少许开裂和轻微溅射。通过微观组织表征发现, LPBF 过程中不同方向组织的差异导致了钨热导率的各向异性。对于水平增材样品, 热流方向平行于增材方向, 沿该方向生长的柱状晶有利于热量传导; 对于垂直增材样品, 热流方向垂直于增材方向, 晶界及以网格状分布的裂纹阻碍热量传导, 热量在表面积累并导致熔化。因此, 增材方向对利用 LPBF 制备偏滤器 mono-block 部件有着重要的影响。

关键词: 增材制造; 钨; 核聚变; 高热负荷; 各向异性

中图分类号: TG146.4⁺11; TN249

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2021)02-0648-06

钨因其良好的高温力学性能、热导率高以及抗辐照性能好, 被选为面向等离子体材料 (PFM), 用于国际热核聚变实验堆 (ITER) 的偏滤器装置^[1-3]。偏滤器面向等离子体部件直接与等离子体相互作用, 服役条件十分苛刻, 需承受来自等离子体强粒子流和高热流的轰击。在当前运行条件下, 偏滤器需要承受 10 MW/m^2 的稳态热负荷^[4]。而对于未来聚变示范堆 DEMO, 如中国聚变工程试验堆 (CFETR), 偏滤器部件设计承载的巅峰热负荷将超过 20 MW/m^2 ^[5]。

目前, 广泛研究的 ITER 级偏滤器为以纯钨作为装甲材料的钨铜复合水冷部件, 包括钨铜穿管型结构和钨铜平板型结构。现有的 ITER 级钨铜复合水冷部件已经通过 5000 次 10 MW/m^2 的热负荷测试, 基本满足 ITER 的运行要求^[6,7]。然而对于未来聚变示范堆 DEMO 乃至商用聚变堆, 现有的钨铜穿管型偏滤器 mono-block 设计仍有着诸多不足。由于钨铜界面的存在, 在超过 500 次 20 MW/m^2 热循环后, 钨表面会发生肿胀粗化, 铜合金发生明显再结晶, 在钨铜结合处会出现局部熔化和开裂现象^[8]。针对未来偏滤器部件,

为解决异种合金结合产生的诸多问题, 可以采用具有复杂内部流道的纯钨代替钨铜穿管型结构。然而, 由于高熔点、高硬度和本征脆性, 钨很难利用传统的加工方式实现复杂内部流道的加工。激光粉末床熔融 (LPBF) 作为一种发展逐渐成熟的增材制造技术, 可以对材料进行一次性成形, 从而使制备具有复杂结构的钨部件成为可能。

为实现 LPBF 纯钨在偏滤器上的应用, 首先需了解钨材料在 LPBF 成形中产生的缺陷及微观组织结构的演化规律, 并对其抗热负荷能力进行评估。截至目前, LPBF 纯钨仍存在着诸多问题, 其中最主要的为致密化和开裂。前人对控制 LPBF 纯钨的缺陷进行了大量的探索, 包括控制制造过程中的氧含量^[9], 提高基板温度^[10], 合金化^[11-13]等, 结果使 LPBF 钨材料成形中裂纹密度明显降低。在微观组织方面, 由于 LPBF 过程中产生的高温梯度, 晶粒极容易沿温度梯度方向向外延生长, 从而导致晶粒等微观组织的各向异性, 并最终导致材料性能的各向异性^[14,15]。例如, LPBF 成形 316L 不锈钢平行于增材制造方向上抗拉强度明

收稿日期: 2020-03-06

基金项目: 国家自然科学基金 (51971115, U1605243)

作者简介: 李恺伦, 男, 1993 年生, 博士生, 清华大学材料科学与工程学院, 北京 100084, 电话: 010-62788237, E-mail: lik116@mails.tsinghua.edu.cn

显低于垂直于增材制造方向上抗拉强度^[14]。在纯钨的 LPBF 制造中,也发现了类似的微观组织结构各向异性^[11,12,16]。而不同方向上微观组织的差异必将影响材料的抗热负荷能力,例如,当轧制方向平行于热流方向时,可以抑制垂直于热流方向裂纹的产生^[17]。因此需要开展 LPBF 纯钨抗热负荷能力的各向异性的系统研究。此外,LPBF 的成形方向会影响部件的打印成本以及成形过程中的几何变形^[18]。因此,本研究将主要从裂纹以及微观组织结构的各向异性出发,采用不同成形方向制备 LPBF 纯钨,并对其进行高热负荷试验,探究 LPBF 纯钨抗热负荷能力的各向异性,为发展 LPBF 作为聚变钨材料的新型制备方法提供理论依据。

1 实验

实验采用的原始粉末为商用钨粉。钨粉经 TekSphere-40 等离子体球化设备进行等离子体球化成为增材制造可用的球形粉末,平均粒径为 32 μm 。LPBF 成形设备型号为 SLM 125,设备配备一台最大功率为 400 W 的 IPG 连续式光纤激光器,激光光斑直径约为 80 μm 。实验采用的成型参数为:激光功率 400 W,扫描间距 100 μm ,扫描速度 700 mm/s,铺粉层厚 30 μm ,采用逐层旋转 67°的扫描方式。样品分别采用竖直增材和水平增材的方式进行成形,其中竖直增材的尺寸为 25 mm×3 mm×30 mm (长×宽×高),水平增材的样品尺寸为 30 mm×25 mm×3 mm (长×宽×高),增材示意图如图 1 所示。对增材成形后的样品进行热等静压处理,选用参数为 180 MPa,1800 $^{\circ}\text{C}$,保温 4 h。热等静压结束后,利用钎焊的方式将样品固定在 CuCrZr 合金的冷却管上。

高热负荷试验在 EMS-60 脉冲强电子束装置上进行,其中冷却水流速为 1.5 m^3/h ,电子束电压为 120 kV。2 个样品同时在 10 MW/m^2 下进行热循环 100 次,

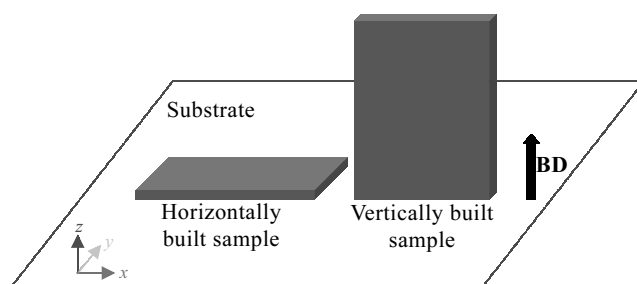


图 1 水平增材和竖直增材与基板相对位置示意图(BD 为增材方向)

Fig.1 Schematic diagram of horizontally built and vertically built samples (BD indicates the building direction)

13 MW/m^2 下热循环 5 次,以及 15 MW/m^2 下热循环 1 次。每次热循环辐照时间为 15 s,间歇 15 s。热负荷期间,使用 CCD 相机、红外摄像机以及高温计对样品进行观测和测温。

通过 TESCAN MIRA 3LMH 扫描电镜 (SEM) 对样品表面和纵截面进行微观组织观察。采用 Oxford Instrument Symmetry 探头,对样品进行电子背散射衍射 (EBSD) 标定。EBSD 数据通过 HKL Channel 5 软件包进行分析。EBSD 试验采用电解抛光后的样品。先采用 SiC 砂纸对样品进行机械抛光,再用浓度为 1.5% (质量分数) 的 NaOH 溶液电解抛光 90 s。样品的实际密度 (ρ) 通过排水法进行测量,采用 LFA 457 激光热导仪测量样品在 30~1000 $^{\circ}\text{C}$ 温度范围内的热扩散系数 (α),其中每个温度下测量 3 次,取得平均热扩散系数。样品的热导率可根据下式得出:

$$\gamma = \alpha C_p \rho \quad (1)$$

其中, γ 为样品热导率, C_p 为比热容。比热容数据见文献[19]。

2 实验结果

由于 LPBF 过程中样品产生了极高的热应力以及钨的本征脆性,使得钨在 LPBF 过程中会产生较多的微裂纹,如图 2 所示。可以看出,在垂直于增材方向

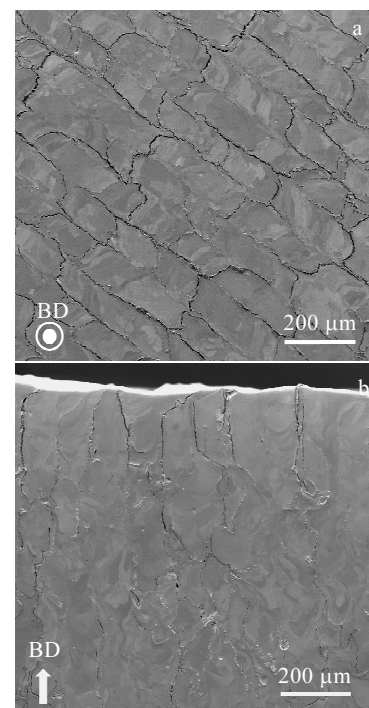


图 2 LPBF 成形样品 x-y 面和 x-z 面的裂纹形貌

Fig.2 Crack morphologies of as-built sample on the x-y side (a) and x-z side (b)

的 x - y 面上, 纵向和横向均存在较多的裂纹。在平行于增材方向的 x - z 面上, 裂纹沿增材方向扩展。

为揭示 LPBF 钨样品在不同方向上微观组织的差异, 对 x - y 面与 x - z 面进行了 EBSD 的表征。其中, x - y 面与 x - z 面的反极图(IPF)如图 3a 和 3b 所示, 图中的不同颜色代表各晶粒的取向, 黑色代表因为裂纹导致的未标定区域。综合 2 个截面的晶粒形貌可以看出, LPBF 纯钨由长轴方向平行于增材方向的柱状晶构成, 在垂直于增材方向的 x - y 面上所观察到的晶粒尺寸小于平行于增材方向 x - z 面上的晶粒。图 3c 和 3d 为 2 个面的晶界分布图, 其中深蓝色线条代表大于 15° 取向差的大角度晶界, 红色代表大于 2° 小于 15° 取向差的小角度晶界。 x - y 面和 x - z 面的平均晶粒尺寸分别为 43.14 和 $55.39 \mu\text{m}$, 如图 3e 和 3f 所示。对 2 种晶界所占比例进行统计后发现, x - y 面上小角度晶界所占比例大于 x - z 面 (如图 3f 所示), 这表明 x - y 面上位错密度大于 x - z 面。LPBF 过程中, 晶粒生长与其热历史有关。LPBF 是一个快速熔化和凝固的过程, 冷速极快, 可高达 10^6 K/s [20]。在垂直于增材方向的 x - y 面上, 由于凝固时极高的冷速, 以及受到熔池尺寸的限制, 晶粒无法在 x - y 面上发生长大, 因此该截面上晶粒尺寸较小。平行于增材方向时, 基板与被熔化的粉末床之间存在极高的温度梯度, 这使得在 LPBF 过程中, 极易发生沿增材方向的外延生长, 并最终形成以增材制造

方向为长轴方向的粗大柱状晶组织。

对不同成形方向的样品进行了密度和热导率的测量。其中水平增材样品密度为 18.64 g/cm^3 , 致密度 96.3% ; 竖直增材样品密度为 18.71 g/cm^3 , 致密度 96.7% 。可以看出, 不同的增材方向对最终成形样品的致密度影响较小。图 4 为 2 种样品 $30\sim 1000 \text{ }^\circ\text{C}$ 温度范围内的热导率。需要说明的是, 为与热负荷试验过程中的热流方向相对应, 对于水平增材样品而言, 所测得的热导率为 x - z 面上沿增材制造方向的热导率。对于竖直增材样品而言, 所测得的热导率为 x - y 面上垂直于增材制造方向的热导率。可以看出, 沿增材方向的热导率在任何温度下都要高于竖直增材方向的热导率, 且在高温下 ($> 800 \text{ }^\circ\text{C}$), 竖直增材方向的热导率衰减速率明显加快。由此可见, LPBF 成形钨的热导率具有各向异性。

对 2 种成形方向的样品进行热负荷辐照, 辐照后的样品表面形貌如图 5 所示。对于竖直增材和水平增材样品, 其辐照面分别为 x - y 面和 x - z 面。可以发现在竖直增材样品的表面出现了起泡现象, 水平增材样品则无明显起泡。

利用 SEM 对热负荷试验后样品的表面形貌进行进一步观察, 如图 6 所示。从图 6a 和 6b 可以看出, 在经过 15 MW/m^2 的热负荷试验之后, 水平增材样品观察到宽度较大的裂纹, 这在辐照前样品表面并未观

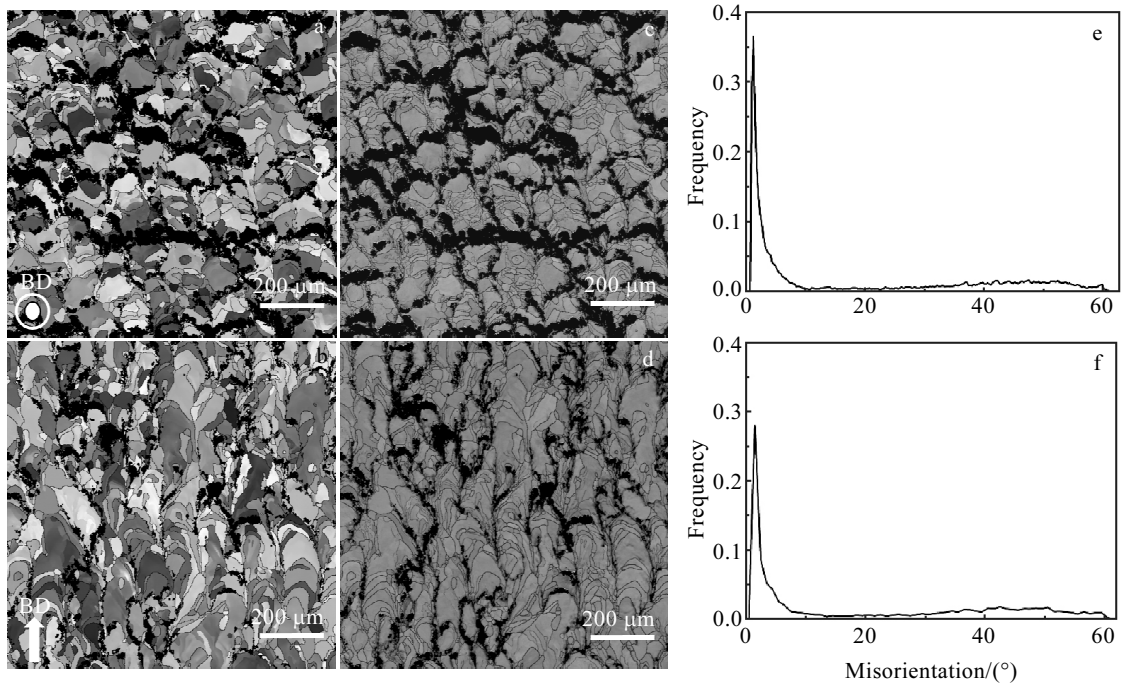


图 3 x - y 面与 x - z 面样品的 EBSD 表征结果

Fig.3 EBSD results of the x - y side (a, c, e) and x - z side (b, d, f) for the samples: (a, b) IPF; (c, d) GB map; (e, f) misorientation distribution

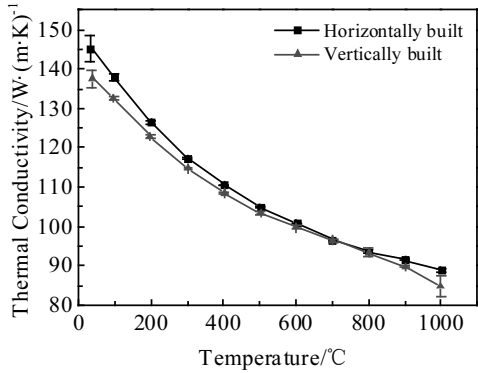


图 4 水平与竖直增材样品在 30~1000 °C 的热导率

Fig.4 Thermal conductivity of horizontally built and vertically built samples at the temperature range of 30~1000 °C

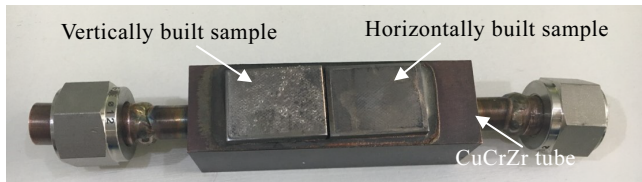


图 5 热负荷试验后样品的表面形貌

Fig.5 Morphologies of the samples after the high heat load test

察到，这表明热负荷后水平增材样品在原有裂纹的基础上可能发生了二次开裂。同时，水平增材样品表面还观察到少量的飞溅颗粒。不同于水平增材样品，竖直增材样品表面绝大部分区域已被熔化形貌所覆盖，且有熔池破裂的现象，如图 6c 所示，这表明该样品在辐照过程中发生了较为严重的熔化和飞溅现象。从图 6d 可以看出，在未融化的区域，原有裂纹处也有少量熔化的迹象，因此可以推断，发生熔化的原因可能是因为裂纹处易发生过热，从裂纹边缘开始先发生熔化。热负荷后水平增材和竖直增材样品表面的形貌差异表明 LPBF 成形钨的抗热负荷能力具有各向异性。

3 讨论

前期研究表明，增材制造钨的热导与其裂纹密度、晶粒大小和位错密度有关^[21]。众所周知，金属通过声子和电子进行热量传导，并以电子导热为主。裂纹作为增材制造钨中的主要缺陷，是影响增材制造钨热导率的主要因素之一^[21]。声子与电子无法越过裂纹进行直接的热传导，降低了热量传输的效率，从而降低热导率。因此与无裂纹缺陷的 ITER 级轧制钨相比（161 W/(m·K)）^[22]，增材制造钨的热导率有一定程度的降低。此外，热导率所表现出的各向异性与组织形貌的各向异性有关。在微观组织中，晶界作为材料中的一

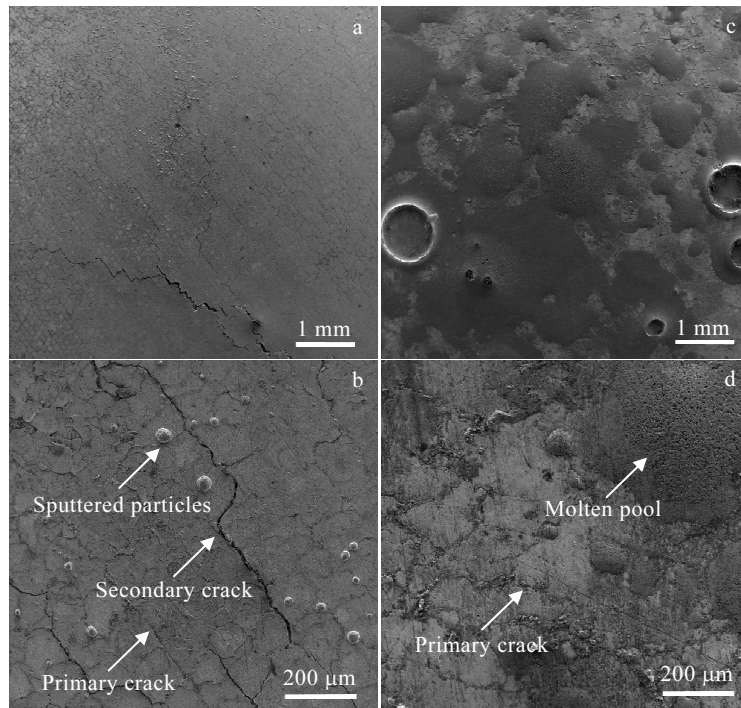


图 6 15 MW/m² 热负荷试验后样品的 SEM 表面形貌

Fig.6 SEM surface morphologies of horizontally built (a, b) and vertically built (c, d) for the samples after 15 MW/m² heat load test

种缺陷,也会导致声子和电子发生散射,进而降低材料的热导率。因此晶粒越小,晶界越多,材料的热导也会越差。对于竖直增材样品,测量热导率过程中,热流方向平行于晶粒较小、位错密度较高的 $x-y$ 面,热流所穿过的晶界更多,同时受到该平面上网格状裂纹的阻碍,造成声子和电子大量散射,最终使沿该面上的热导降低;而对于水平增材样品,测量热导率过程中,热流方向平行 $x-z$ 面上粗大柱状晶的长轴方向,晶界对热流的阻碍作用较小。同时,该面上位错密度较小且多数裂纹与热流方向平行,对声子和电子的散射较少,因此该方向的热导率相对较高。

结合上述不同截面上微观组织的表征结果,辐照的热流方向与样品增材制造方向及微观组织特征之间的对应关系如图 7。对于水平增材样品,辐照热流平行于样品的 $x-z$ 面,热流方向平行于增材制造方向。而热导率测量结果表明该方向的热导率较高,热量可以有效地通过柱状晶向下传导。因此,在 15 MW/m^2 的热负荷下,辐照表面并未发生严重的熔化现象。裂纹的二次开裂有可能是因为在高热循环过程中发生了应力的累积,使得原有裂纹进一步扩大。与之相反,对于竖直增材样品,辐照过程中的热流方向垂直于增材方向,热导率较小,使得热量无法迅速向下传导,大部分只能沿表面进行扩散,导致热量在样品表面累积。在 15 MW/m^2 的热负荷下,累积的热量足以使表面发生熔化,熔体在持续的热输入后发生沸腾并破裂飞溅,并在冷却过程中形成熔坑。因此,受 LPBF 成形钨独特的微观组织影响,热导率的各向异性是导致不同增材方向成形样品抗热负荷能力不同的根本原因,而水平增材样品,即热负荷热流方向平行于增材制造方向时,具有更好地抗热负荷能力。

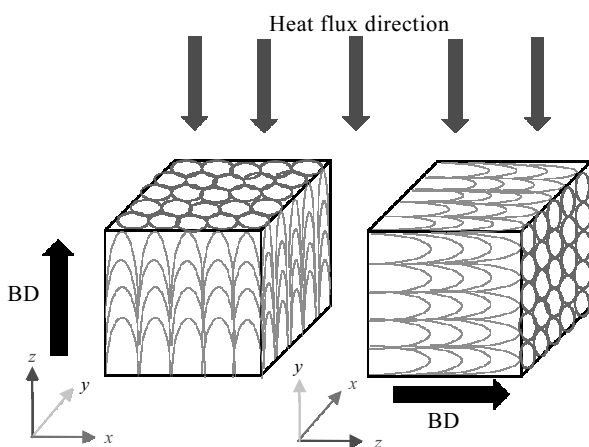


图 7 热流方向与微观组织的对应关系示意图

Fig.7 Relationship between the heat flux and the microstructure

4 结 论

1) LPBF 成形纯钨的裂纹与微观组织具有显著的各向异性,并导致了热导率的各向异性,平行于增材方向的热导率高于垂直于增材方向的热导率。在 15 MW/m^2 的高热负荷下,竖直增材样品表面出现了明显的熔化与飞溅现象,水平增材样品表面出现二次开裂和少许飞溅。

2) 对于水平增材样品而言,由于热流方向与增材方向平行,热导率更高,因此更有利于热传导。

3) 对于竖直增材样品而言,热流方向垂直于增材方向,热导率较小,热量难以传递,造成表面热量积累,出现熔化现象。

4) 对于未来偏滤器 mono-block 的成形,应优先采用水平增材的方式进行成形。

参考文献 References

- [1] Temmerman D G, Hirai T, Pitts R A. *Plasma Physics and Controlled Fusion*[J], 2018, 60(4): 44 018
- [2] Rieth M, Boutard J L, Dudarev S L *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2011, 417(1-3): 463
- [3] Wurster S, Baluc N, Battabyal M *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 442(1-3): 181
- [4] Pitts R A, Carpentier S, Escourbiac F *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 438: 48
- [5] Li J, Wan Y. *Journal of Fusion Energy*[J], 2019, 38(1): 113
- [6] Merola M, Escourbiac F, Raffray A R *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2015, 96-97: 34
- [7] Hirai T, Escourbiac F, Barabash V *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 463: 1248
- [8] Greuner H, Böswirth B, Barrett T R *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2019, 146: 216
- [9] Zhou X, Liu X, Zhang D *et al. Journal of Materials Processing Technology*[J], 2015, 222: 33
- [10] Müller A V, Schlick G, Neu R *et al. Nuclear Materials and Energy*[J], 2019, 19: 184
- [11] Li K L, Wang D Z, Xing L L *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2019, 79: 158
- [12] Li K L, Ma G Q, Xing L L *et al. Materials Letters*[J], 2020, 263: 127 212
- [13] Wang D, Wang Z, Li K *et al. Materials and Design*[J], 2019, 162: 384
- [14] Zong Xuwen(宗学文), Gao Qian(高 倩), Zhou Hongzhi(周宏志) *et al. Chinese Journal of Lasers*(中国激光)[J], 2019, 46(5): 502 003

- [15] Hou Wei(侯伟), Chen Jing(陈静), Chu Songlin(储松林) *et al. Chinese Journal of Lasers*(中国激光)[J], 2018, 45(7): 67
- [16] Wang D Z, Li K L, Yu C F *et al. Acta Metallurgica Sinica, English Letters*[J], 2019, 32(1): 127
- [17] Barabash V, Federici G, Matera R *et al. Physica Scripta*[J], 1999, T81: 74
- [18] DebRoy T, Mukherjee T, Milewski J O *et al. Nat Mater*[J], 2019, 18(10): 1026
- [19] Wang Y K, Miao S, Xie Z M *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2017, 492: 260
- [20] Liu Y J, Liu Z, Jiang Y *et al. Journal of Alloys and Compounds*[J], 2018, 735: 1414
- [21] Chen J H, Li K L, Wang Y F *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2020, 87: 105 135
- [22] Pintsuk G, Kurishita H, Linke J *et al. Physica Scripta*[J], 2011, 145: 14 060

Effect of Building Direction on High Heat Load Resistance of Laser Powder Bed Fused Tungsten

Li Kailun¹, Chen Jinhan¹, Zhao Congcong², Xing Leilei¹, Wang Jianbao³, Chen Zhe³,
Lian Youyun³, Feng Fan³, Liu Xiang³, Liu Wei¹, Shen Zhijian¹

(1. Tsinghua University, Beijing 100084, China)

(2. Jihua Laboratory, Foshan 528000, China)

(3. Southwestern Institute of Physics, Chengdu 610041, China)

Abstract: As a novel additive manufacturing technique, laser powder bed fusion (LPBF) provides a new forming method for the fabrication of divertor mono-block for the future nuclear fusion reactor. In this study, pure tungsten samples were built by the LPBF technique horizontally and vertically. It is found that under the heat load of 15 MW/m², there are severe melting and sputtering in the vertically built samples, while only a little cracking and sputtering occur in the horizontally built samples. It is believed that the anisotropy of the thermal conductivity of LPBFed tungsten samples is caused by the microstructure difference in different directions. For the horizontally built sample, the direction of the heat flow is parallel to the building direction, and the coarse columnar grains grown along this direction is favorable for heat conduction. For the vertically built sample, the heat flow direction is perpendicular to the building direction, and the grain boundaries and crack network hinder the heat conduction. Therefore, the heat accumulation on the surface of vertically built sample causes melting. This study shows that the building direction has an unavoidable impact on the fabrication of divertor mono-block using the LPBF technique.

Key words: additive manufacturing; tungsten; nuclear fusion; high heat load; anisotropy

Corresponding author: Shen Zhijian, Ph. D., Professor, School of Materials Science and Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, P. R. China, Tel: 0086-10-62788237, E-mail: shen@mmk.su.se