



轧制加工对聚变装置用颗粒增强钨合金性能影响的研究进展

罗来马^{1,2}, 赵志豪¹, 姚 刚¹, 咎 祥^{1,2}, 朱晓勇², 程继贵^{1,2}, 吴玉程^{1,2,3}

- (1. 合肥工业大学 材料科学与工程学院, 合肥 230009;
2. 有色金属与加工技术国家地方联合工程研究中心, 合肥 230009;
3. 新材料界面科学与工程教育部重点实验室, 太原 030024)

摘 要: 钨(W)由于具有高熔点、高溅射阈值、良好的热导率, 被认为是最理想的聚变装置用候选材料。颗粒增强钨合金在轧制加工过程中产生的一系列组织与结构转变将对材料的性能产生一定的影响。本文综述了轧制加工对颗粒增强钨合金力学性能、热导率和抗热冲击损伤性能的影响, 并指出了热核聚变反应堆用钨材料的研究前景和发展方向。

关键词: 面向等离子体材料; 颗粒增强钨合金; 轧制加工; 微结构; 性能

文章编号: 1004-0609(2021)-xx- -

中图分类号:

文献标志码: A

引文格式: 罗来马, 赵志豪, 姚 刚, 等. 轧制加工对聚变装置用颗粒增强钨合金性能影响的研究进展[J]. 中国有色金属学报, 2021, 31(x): xxxx-xxxx. DOI: 10.11817/j.ysxb.1004.0609.2021-36610

LUO Lai-ma, ZHAO Zhi-hao, YAO Gang, et al. Research progress on influence of rolling process on performance of particle-reinforced tungsten alloys for fusion devices[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2021, 31(x): xxxx-xxxx. DOI: 10.11817/j.ysxb.1004.0609.2021-36610

热核聚变能依靠氘氚聚变反应可以获得清洁可再生能源, 是解决能源枯竭问题的有效途径^[1]。但堆体中的极限工作环境使得聚变堆部件在服役过程中会受到高热负荷产生的热应力腐蚀, 同时服役过程中高能粒子流作用在面向等离子体材料(PFMs)表面会产生强烈的刻蚀效应。实现 PFMs 在聚变堆极端环境中保持自身力学性能的高度稳定, 是突破壁载材料在工程化应用上的首要问题之一^[2-3]。

钨由于具有高熔点、高弹性模量、高溅射阈值和良好的导热性被认为是第一壁最佳候选材料^[4-5]。但钨本身的高韧脆转变温度(DBTT)使得其表现出低温脆性, 较低的再结晶温度(RCT: 1200 °C)使钨在高温作用下发生再结晶脆化, 热应力累积和腐蚀使材料产生裂纹, 导致其性能发生急剧退化,

因而降低钨的 DBTT 和提高材料在高热流环境中性能的稳定性成为聚变堆用钨材料改性的研究重点^[6-7]。目前认为主要是因为以下三种影响因素导致了钨的脆性: 1) 钨本身作为体心立方(BCC)结构金属, 材料内部滑移系较少, 位错主要依靠 $1/2\{110\}\langle 111\rangle$ 滑移系(滑移方向 $\langle 3\rangle$)运动; 2) 烧结多晶钨基体中存在大量的大角度晶界, 这些晶界高度应变不相容性致使微裂纹容易形核与长大; 3) 钨晶界处存在大量杂质元素(P、O、N 和 S 等), 尤其是 O、P 元素对晶界结合力的降低, 使得材料的塑性变形抗力降低, 导致材料表现出脆性行为^[8-12]。钨的塑性对温度具有高度依赖性, 在低于 $0.2T_m$ (熔点的 20%)的温度下, 如图 1 中所示的位错扭结对形核与增殖是螺型位错在 $\langle 111\rangle$ 晶向的运动的主要动力来源^[13]。

基金项目: 国家重点研发计划磁约束聚变能发展专项(2017YFE0302600, 2019YFE03120004); 国家自然科学基金面上项目(51674095)

收稿日期: 2020-10-12; **修订日期:** 2021-04-18

通信作者: 罗来马, 教授, 博士; 电话: 0551-62902604; E-mail: luolaima@126.com

$$\varepsilon'_p = \frac{b\rho_d a}{\tau_g + \tau_m} \quad (1)$$

式中： ε'_p 为有效应变速率； τ_g 为产生扭结对所需要的时间常量； τ_m 为将扭结对移动到位错线范围内的时间常量； ρ_d 是在 $\langle 111 \rangle$ 晶向 Burgers 向量为 b 的可动螺型位错密度。螺型位错具有较差的应变响应速率，使得扭结对形成以及越过 Peierls 能垒所需要的时间较长，在短时间内无法完成应力-应变响应，导致烧结多晶钨在低温下表现出脆性。

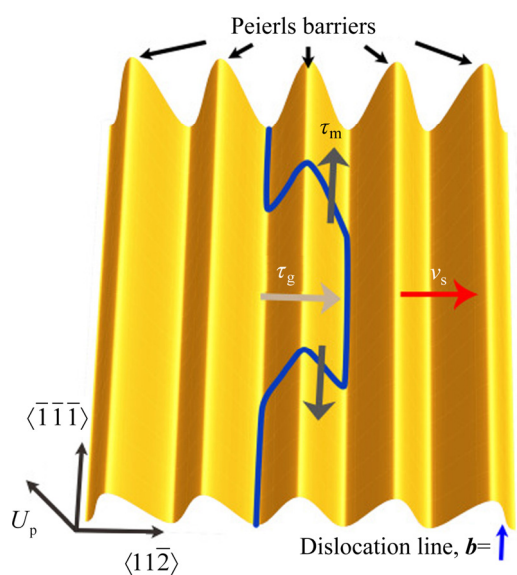


图1 低温下 BCC 钨中螺型位错扭结对在(110)平面上传播的示意图^[13]

Fig. 1 Illustration of a BCC screw dislocation propagating on a (110) plane with a sinusoidal Peierls barrier described by UP. At low temperatures, screw dislocation propagates based on thermally activated kink-pair mechanism^[13]

研究表明，通过掺杂第二相颗粒、添加合金化元素、引入韧性纤维等，可获得具有高强度、高抗热负荷损伤、抗辐照损伤性能的钨合金^[14-16]。其中，掺杂纳米第二相颗粒可以有效改善钨合金的性能，纳米颗粒主要包括碳化物和氧化物两大类，如 W-Y₂O₃，W-La₂O₃，W-ZrC，W-TiC，W-TaC 等^[17-21]。微量活性元素(如 Zr、Ti、Y 等)可以与偏聚在晶界处的氧元素发生反应，烧结过程中在钨基体中形成热稳定性良好的难熔金属氧化物颗粒，降低杂质氧元素对晶界强度的影响，对晶界的净化提高了晶界强度^[22]。掺杂氧化物颗粒的优点在于可以通过化学

方法制备复合粉末，易于实现工业批量化应用。而且，氧化物掺杂不会引入碳元素，对氦在钨中的滞留行为影响较小。与氧化物强化相相比，碳化物的优点在于 TiC、ZrC、HfC 等碳化物具有和钨基体相似的物理或化学性质，其熔点较高，与钨基体的相容性较好。但纳米颗粒掺杂对于钨合金的高 DBTT 问题，却始终很难有显著的改善。不可否认，添加高含量铼(Re)元素产生的固溶软化效应可以有效改善钨合金的韧性，但合金化元素 Re 昂贵的价格限制了其在聚变堆工程的批量化应用^[23-24]。而且，由于第二相颗粒掺杂的结果，使得颗粒掺杂钨合金普遍具有低于 ITER W 标准的热导率(176 W/(m·K))，这严重影响了钨合金在高温环境中性能的稳定性的^[25]。在对钨合金的大塑性变形(如轧制、自由锻、型锻等)研究中发现，严重塑性变形后的钨合金可以获得较高的韧性，这种反常的加工软化效应显著降低了钨基材料的 DBTT，改善了钨合金的可加工性和工程适用性^[16, 26-29]。此外，轧制过程中产生的微结构转变和择优取向对颗粒增强钨合金的热导率和抗热冲击损伤性能具有重要的影响。因此研究轧制加工对颗粒增强钨合金性能的影响是十分有必要的。本文系统概述了轧制过程中颗粒增强钨合金的微结构转变，分析讨论了轧制加工对颗粒增强钨合金力学性能、热导率和抗热冲击损伤性能的影响与作用机制，并结合研究现状，对适用于未来聚变堆工况环境下高性能轧制态颗粒增强钨合金的研究前景进行了展望。

1 力学性能

钨合金在较低温度下，螺型位错的迁移率有限，每个滑移系统中仅部分滑移被激活。当独立滑移系统 < 5 时，钨基体将不能适应任意应变场，导致晶粒间高度不相容，应变不协调使得裂纹在弱晶界处形核、长大，产生沿晶界的解理断裂^[6, 14]。而轧制变形对钨基复合材料的 DBTT 具有明显的降低作用，使得韧性得到提高。这是因为在轧制变形过程中，钨基体中微结构与组织发生转变，同时块体内部孔隙率的降低，使得材料的致密度得到提高，对颗粒增强钨合金的力学性能具有明显的改善作用。

轧制后的钨板, 沿 RD 方向晶粒被拉长, 而沿 ND 方向的晶粒被压扁, 在严重塑性变形过程下, 晶粒反复经历破裂、形核和长大的过程, 最终可获得沿 RD 方向具有高长径比的晶粒^[15]。WANG 等^[30]研究了轧制态 W-HfC 合金的高温力学性能稳定性和高温拉伸性能。轧制态和不同温度退火态纯 W、W-HfC 合金和 W-ZrC 合金的极限抗拉强度、伸长率与温度之间的变化关系如图 2 所示。轧制态 W-HfC 合金在室温下具有高达 750 MPa 的抗拉强度。理论上, 位错强化(应变强化)、晶粒细化强化和第二相颗粒强化是金属材料的三种重要强化机制。在轧制过程中, 产生了高密度的位错, 提高了位错响应应变的效率。在室温下, 载荷作用在样品上时, 这些位错就像障碍物一样相互堆积、缠绕。根据 Taylor 关系, 基体中位错的存在对抗拉强度的贡献是^[31]:

$$\sigma_D = \alpha b \mu \rho^{1/2} \quad (2)$$

式中: α 为位错强化系数; b 为伯格向量; μ 为基体材料的剪切模量; ρ 为位错密度。W-HfC 合金在室温下的高抗拉强度正是由于这一因素。在 200 °C 时, 在拉伸应力作用下, 材料发生应变, 表明 W-HfC 合金的 DBTT 小于 200 °C, 显著低于文献中报道的烧结态颗粒增强钨合金。粉末冶金方法制备的钨块中存在一些难以闭合的孔隙, 在轧制加工后可以被消除。而且烧结态钨合金中不稳定界面(大角度晶界)占比高, 在载荷作用下易于形成微裂纹^[32]。大量报道表明晶界处偏聚的杂质元素(P、O 等)会降低晶界结合力, 而轧制过程中形成的高密度小角度晶界使得界面总面积增大, 杂质在晶界的偏聚被稀释, 对晶界的强化使得材料的韧性得到改善^[33-34]。此外, 这些高密度小角度晶界会在界面处形成位错网络, 成为 Frank-Read 或 Bardeen-Herring 位错源。额外位错形核点的产生, 极大促进位错响应应变的效率, 且小角度晶界有利于位错的跨晶界运动, 降低了位错塞积率, 使裂纹不易萌生和扩展, 显著提高了颗粒增强钨合金的低温韧性^[35]。因而轧制对颗粒增强钨合金室温韧性的改善主要归功于位错响应应变效率的提高和对基体中固有缺陷的消除。

轧制态 W-HfC 合金的高屈服强度更多是细晶强化和第二相强化造成的。众所周知, 细化晶粒可以在不损失塑性的情况下, 提高材料强度。由于在

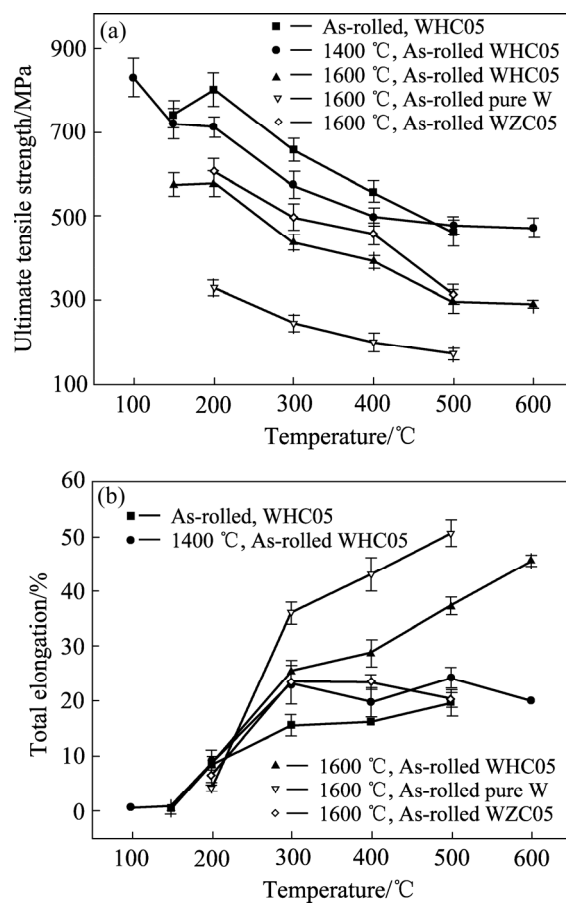


图 2 不同状态纯 W, W-HfC 合金和 W-ZrC 合金的高温拉伸屈服强度和伸长率^[30]

Fig. 2 UTS and TE of as-rolled W-0.5%HfC, as-rolled W-0.5%HfC annealed at 1400 °C, as-rolled W-0.5%HfC annealed at 1600 °C^[30]

热轧过程中大于 50% 的压下量以及纳米级 HfC 颗粒对晶界的钉扎, W-HfC 合金的晶粒得到了很大的细化。晶粒细化对屈服强度提高的贡献可以用 Hall-Petch 方程来表示:

$$\sigma_G = \sigma_0 + k d^{1/2} \quad (3)$$

式中: σ_0 为纯 W 的本征屈服强度; k 为比例因子; d 为晶粒直径。相邻晶粒的取向差异, 以及晶粒细化过程中晶界密度的大幅度增加, 使得位错的跨晶界运动变得更加困难。这时候多个滑移系统需要同时响应应变, 以满足晶界的变形协调。因此, 不能跨越晶界的位错将堆积在相邻晶粒界面上。这些堆积的位错使得基体的抗拉强度增大。晶界密度增加对位错的塞积的加剧和小角度晶界促进位错跨晶运动形成反作用, 符合材料强度与塑性之间的对立

关系。然而温度的继续升高使得位错湮灭,显著降低了基体中的位错密度,因而高温下的强度主要来源于颗粒强化。细小的 HfC 颗粒分散在晶界或晶内(见图 3),位错不能穿过它们,因此被困在这些颗粒周围。同时,晶界上分布的第二相颗粒阻碍了晶界的运动。根据 Orowan-Ashby 方程^[36]:

$$\sigma_p = \frac{m\mu b}{1.18 \times 2\pi\phi \left(\sqrt[1/3]{\pi/(6f_v)} - 1 \right)} \ln \left(\frac{\phi}{2\pi} \right) \quad (4)$$

式中: m 为泰勒因子; μ 为剪切模量; b 为伯格斯的向量的大小; ϕ 为颗粒尺寸; f_v 为颗粒体积分数。轧制加工改善了第二相在基体中的均匀弥散分布状态,有效提高了 W-HfC 合金的抗拉强度。在 1300 °C 退火后,纯钨硬度从 440 HV 显著降低至 370 HV,表明纯钨的再结晶温度约为 1300 °C,这与烧结商业纯钨的再结晶温度基本一致,可见轧制加工对于钨合金的再结晶温度没有明显的改善作用。因而,退火态 W-HfC 和 W-ZrC 合金试样的高抗拉强度和高再结晶温度主要归功于纳米第二相对钨基体性能的改善。而 W-HfC 合金和 W-ZrC 合金拉伸性能的差异主要是由于掺杂第二相粒子的不同所导致的,从文献中的数据来看,相对于 ZrC,掺杂

颗粒更有利于提高钨合金的高温抗拉强度。

对于 ODS-W 合金,轧制工艺同样显著改善了钨合金的脆性行为。ZHAO 等^[37]报道了热轧(1600 °C/压下量为 75%)W-Y₂O₃ 合金 RD 方向试样在室温下三点弯曲试验的断裂强度高达 2152.7 MPa,远高于烧结态纯钨和 W-Y₂O₃ 合金,可见轧制对于 W-Y₂O₃ 的室温脆性具有显著的改善。此外,其断裂强度比相似工艺的轧制纯钨要高出许多,这主要归功于 Y₂O₃ 粒子对晶粒的细化和对晶界的钉扎作用,使得晶界强度变高,提高了材料的断裂韧性。如图 4 所示,轧制后 W-Y₂O₃ 合金的断裂模式从沿晶断裂转变为穿晶断裂,表明轧制后 W-Y₂O₃ 合金的晶界强度得到提高,这主要归功于热轧过程中对烧结体中残留孔隙的消除作用,以及剧烈塑性变形过程中对颗粒间键合不足的改善^[38-39]。

为了便于比较,一些热轧颗粒增强钨合金的室温拉伸断裂强度和 DBTT 如表 1 所示。对于不同的氧化物/碳化物颗粒增强钨合金,在热轧后均获得低于 300 °C 的 DBTT,热轧过程中可动位错密度和位错跨晶运动效率的提高是改善钨室温脆性的关键因素。晶界强度是导致钨本征脆性的重要影响因素,塑性变形过程中晶粒的细化以及对颗粒分布状

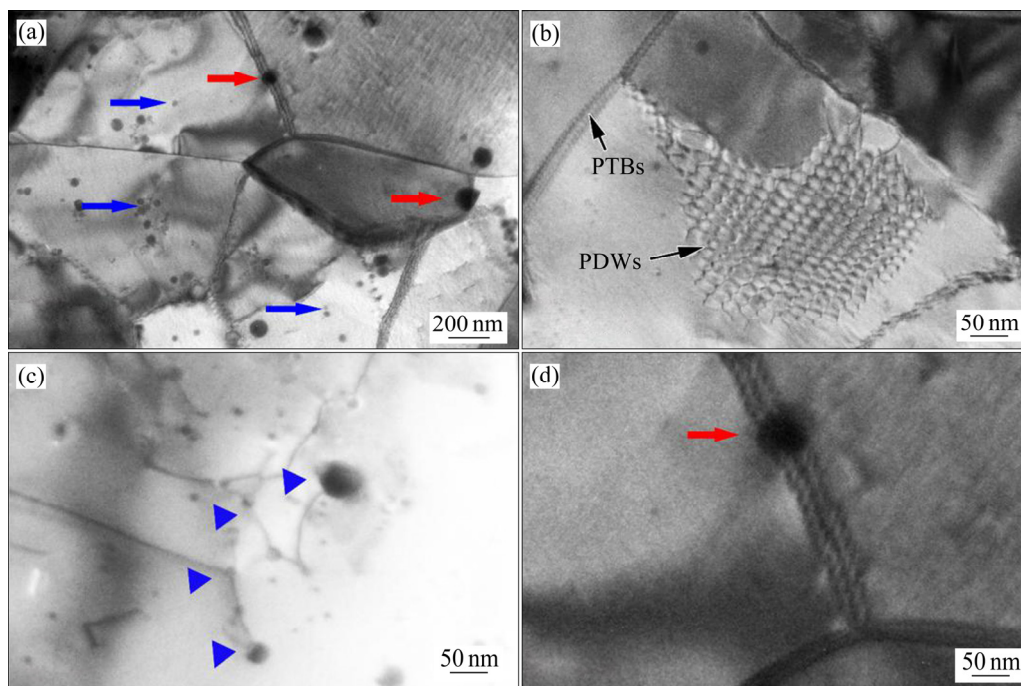


图 3 透射图像下轧制态 W-HfC 合金中 HfC 颗粒和位错的分布状态^[30]

Fig. 3 TEM images of (a) as-rolled W-0.5%HfC, (b) PDWs and PTBs in as-rolled W-0.5%HfC, (c) intragranular nano-sized HfC particles pinning dislocations and (d) nano-HfC particle pinning GBs^[30]

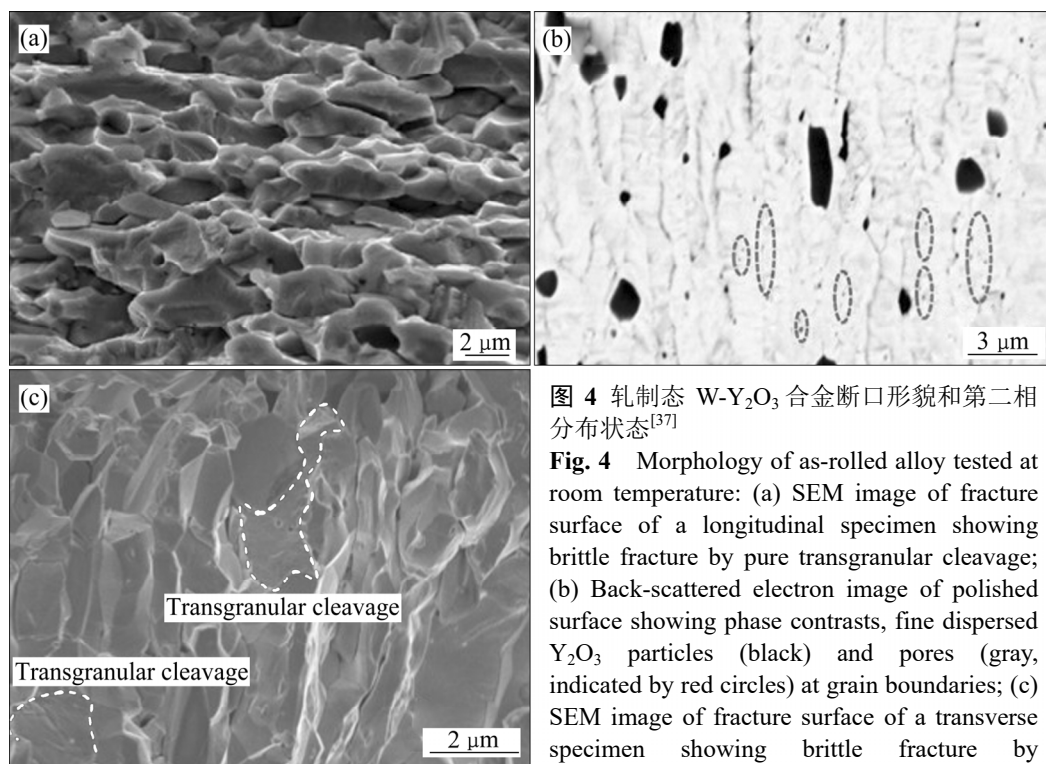


图 4 轧制态 W-Y₂O₃ 合金断口形貌和第二相分布状态^[37]

Fig. 4 Morphology of as-rolled alloy tested at room temperature: (a) SEM image of fracture surface of a longitudinal specimen showing brittle fracture by pure transgranular cleavage; (b) Back-scattered electron image of polished surface showing phase contrasts, fine dispersed Y₂O₃ particles (black) and pores (gray, indicated by red circles) at grain boundaries; (c) SEM image of fracture surface of a transverse specimen showing brittle fracture by intergranular and a small amount of transgranular cleavage^[37]

表 1 一些文献中报道的轧制态钨合金在拉伸实验下测得的 DBTT

Table 1 DBTT measured under tensile test for as-rolled tungsten alloys in some reported papers

Materials	Dimension/mm	Strain rate	DBTT/°C	Ref.
W-HfC	1.5×0.75×5	0.06 mm/min	200	[30]
W-Y ₂ O ₃	1.5×0.75×5	0.06 mm/min	200	[40]
W-Zr-Y ₂ O ₃	1.5×0.75×5	0.06 mm/min	150	[40]
W-TaC	1.5×0.75×5	0.06 mm/min	200	[41]
W-TiC	13×1.5×64	6×10 ⁻² s ⁻¹	300	[42]
W-ZrC	1.5×0.75×5	0.06 mm/min	300	[43]

态的改善, 也有效改善了钨在室温下的脆性。对于颗粒增强钨合金, 在高温下的力学行为, 更多还是受到颗粒增强相对基体的影响。而 Zr 元素的添加, 可以使热轧 W-Y₂O₃ 合金的 DBTT 降低至 150 °C, 这主要归因于合金化元素对晶界强度的改善作用, 因而采用热轧加工制备合金化与颗粒复合增强钨合金或许是未来重点研究方向。

2 热导率与抗热冲击损伤性能

碳化物和氧化物颗粒的热导率与钨基体存在一定的差异, 而且纳米第二相颗粒对晶粒的细化作

用, 显著增加了界面面积, 使得钨合金对自由电子的散射能力变强, 严重降低了钨合金的热导率^[44]。而且第二相颗粒在基体中的分布状态也会严重影响钨基体的导热性能。如 OKSIUTA 等^[45]制备的 W-TiC 合金在室温下热导率仅为 26.5 W/(m·K), 这主要是 TiC 颗粒在晶界处的粗化与不均匀分布所造成的。而且相对于碳化物, 氧化物在烧结过程中更容易在晶界处粗化, 因而解决颗粒掺杂对钨合金导热性能的降低是实现钨合金在稳态热流环境中安全服役的关键问题之一。

苗等^[46]通过轧制和随后的退火制备了 W-0.5%TaC 合金, 研究了 TaC 含量和轧制变形工艺

对 W-TaC 合金热导率的影响。不同状态 W-TaC 合金热导率与温度的变化关系如图 5 所示, 对于烧结态的 W-TaC 合金, 随着 TaC 含量的增加, 合金的热导率呈现先增加后降低的趋势, 并在 0.5% 添加量时获得最高热导率, 但烧结态的 W-TaC 合金试样其热导率均低于纯钨。一开始热导率的增加可能是因为第二相颗粒掺杂对烧结体致密度的改善作用所导致的, 随着颗粒的增加, 对晶粒的细化使得热导率显著降低。而对 W-0.5%TaC 合金进行轧制加工后, 沿 RD 方向的室温热导率显著增加至 175 W/(m·K), 比烧结态纯 W(139 W/(m·K)) 的热导率高出 26%。这归因于轧制过程中沿 RD 方向的钨晶粒被拉长。晶界数量和密度的降低, 使得电子在界面上的散射被削弱, 从而提高了 W-0.5%TaC 合金的导热性能。800 °C 退火 1 h 后, W-0.5%TaC 合金获得高达 186 W/(m·K) 的热导率, 超过了 ITER 级钨材料的水平(174 W/(m·K))。可见, 高温退火过程中, 点缺陷和位错的湮灭显著降低了电子的散射, 从而使得 W-0.5%TaC 合金的导热性得到改善^[47]。同样, 对于热轧过程中存在的动态回复和动态再结晶阶段对缺陷的湮灭也对热导率的提升起到一定的促进作用。

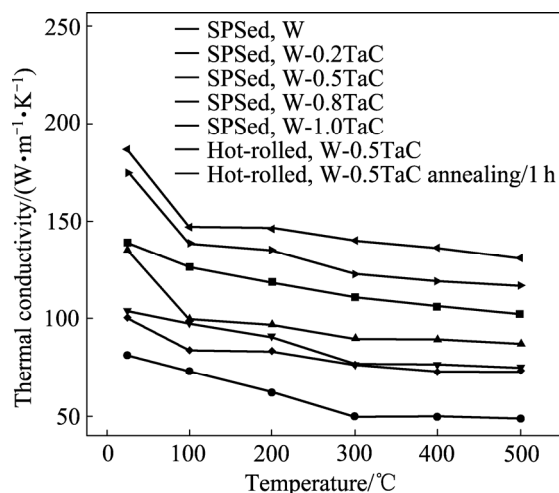


图 5 不同状态 W-TaC 合金热导率与温度的变化关系^[46]

Fig. 5 Comparison of thermal conductivity of SPSed W and W-0.2%TaC, W-0.5%TaC, W-0.8%TaC, W-1.0%TaC, rolled W-0.5%TaC and rolled W-0.5%TaC annealed at 800 °C^[46]

但变形材料的主要缺点是变形织构会导致材料的导热系数呈各向异性。轧制加工后基体中存在

的织构, 使得材料在一定织构取向上的热导性能较为优越, $\langle 111 \rangle$ 密排方向表现出最大的热导率, 而且沿 RD 方向的热导率明显高于 ND 方向的热导率。而 YAO 等^[48]制备的热轧 W-Y₂O₃ 合金在 RD 和 ND 方向上的热导率近似一致(见图 6)。沿 RD 方向晶体取向主要为 $[110]$, 而沿 ND 方向的晶体取向主要为 $[100]$ 。这说明纤维织构对热导率的影响被晶体取向产生的热导率差异所抵消, 使得轧制态 W-Y₂O₃ 合金在不同取向上获得相同的导热性能, 在 300 K 时具有高达 188 W/(m·K) 的热导率, 显著减小了 W-Y₂O₃ 合金在高温热流作用下材料内部的温度梯度, 提高了材料在高温环境中的性能稳定性。因而可以通过控制轧制加工变量使有利取向的织构类型增多, 获得具有高热导率的颗粒增强钨合金。

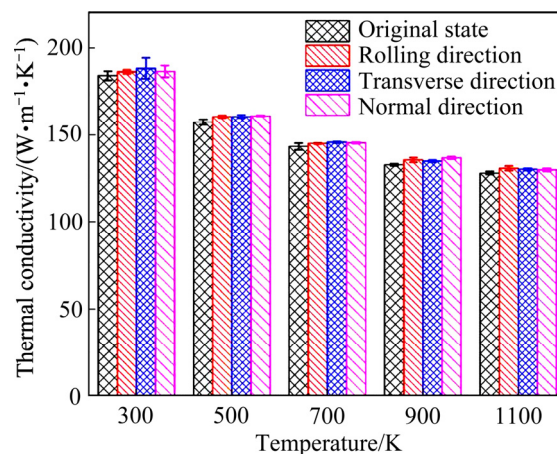


图 6 热轧 W-Y₂O₃ 合金沿不同轧制取向热导率与温度的变化关系^[48]

Fig. 6 Thermal diffusivity of W-Y₂O₃ specimens at original and rolled state along various directions^[48]

对于聚变堆部件用颗粒增强钨合金, 在正常服役工作环境中, 偏滤器部位的部件受到的稳态热负荷为 5~10 MW/m²^[49]。而当等离子体发生瞬态事件时, 如主要等离子体中断、边缘局部模式(ELMs)和垂直位移事件(VDEs), 这些瞬态热负荷事件可能导致反应器温度显著升高, 超过正常工作温度, 偏滤器部位的瞬态热负荷可以达到 20 MW/m²^[50]。材料在温度梯度和热应力作用下出现粗糙化、开裂、熔融等严重形貌和结构损伤, 将导致聚变反应堆部件服役失效和污染等离子体。热冲击裂纹形成的一般机理主要归因于高温热流作用过程中温度梯度产生的热应力使得材料出现凸起, 开裂和剥落。因

此, 钨材料的抗热冲击损伤性能与热导率密切相关, 良好的导热性能将会显著减小材料在热流作用下产生的温度梯度, 提高材料的抗热负荷损伤性能。此外, 更高的韧性也会提高材料在热冲击作用下的开裂阈值, 因为良好的韧性可以使材料在热冲击作用下通过微塑性变形来释放应力, 抑制裂纹的产生与扩展, 进而改善材料在热负荷作用下的损伤行为^[51]。

XIE 等^[52]通过轧制和型锻分别制备了 W-ZrC 合金, 采用单脉冲电子束对合金试样在室温下进行了不同功率密度的热冲击实验, 停留时间为 5 ms。图 7 展示了两种合金试样在瞬态热冲击作用后表面形貌和结构损伤, 可以明显看出在瞬态热负荷作用下, 轧制态 W-ZrC 合金比锻造态 W-ZrC 合金具有

更好的抗热震性能。锻造态 W-ZrC 合金在 0.44 GW/m^2 热负荷作用下, 产生了明显的开裂, 而轧制态 W-ZrC 合金在高达 0.88 GW/m^2 热负荷作用下, 裂纹才开始产生。造成这种差异主要是两种试样热导率和韧性的差异, 一方面, 轧制态 W-ZrC 合金的热导率比锻造态 W-ZrC 合金的热导率高出 $20 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$; 另一方面, 轧制态 W-ZrC 合金的抗弯强度高达 2.84 GPa , 比锻造态 W-ZrC 合金要高出一倍, 轧制加工和颗粒强化对 W-ZrC 合金强度和韧性的改善显著提高了钨材料的热负荷开裂阈值。

为了便于比较, 一些文献中报道的钨合金(例如, 纯 W^[54], W-ZrC^[49], W-Y₂O₃^[55], W-La₂O₃^[56]和 W-TaC^[41])与 ITER W 的瞬态热冲击开裂阈值总结如表 2 所示。相对于轧制态 W-ZrC 合金的高热负

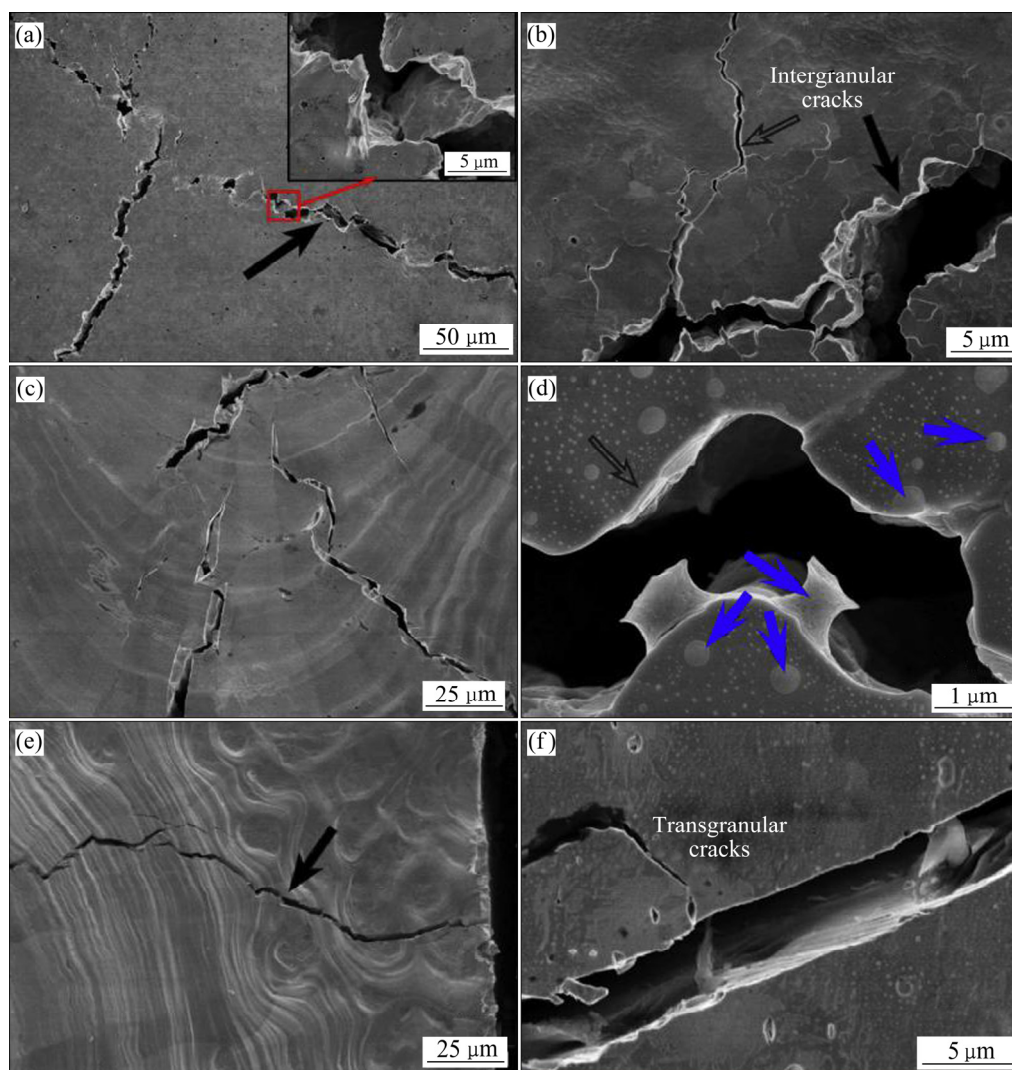


图 7 不同功率密度热负荷加载后轧制态和锻造态 W-ZrC 样品表面 SEM 像^[52]

Fig. 7 SEM micrographs of loaded areas on swaged W-ZrC ((a)–(d)) and rolled W-ZrC ((e)–(f)) after a single pulse for 5 ms at RT with various absorbed power densities: (a) 0.44 GW/m^2 ; (b) 0.66 GW/m^2 ; (c), (d) 0.88 GW/m^2 ; (e), (f) 1.1 GW/m^2 ^[52]

荷开裂阈值, 烧结态颗粒增强钨合金的开裂区间均低于 0.88 GW/m^2 , 值得注意的是, La_2O_3 的添加, 不仅没有改善钨合金的热冲击损伤行为, 还使得钨合金在 0.17 GW/m^2 下就出现了明显的热裂纹, 这可能是因为 La_2O_3 颗粒在晶界处的不均匀分布对热导率的降低, 以及颗粒掺杂对晶粒的细化造成的。可见颗粒增强对钨合金性能的影响有利有弊, 因而需要选择合适的第二相和掺杂量, 以获得综合性能优异的钨合金。通过后续轧制加工对热导率和韧性的提升可以有效改善钨合金在瞬态热负荷作用下的损伤行为, 因而轧制加工是制备满足未来聚变堆用颗粒增强钨合金的可靠工艺。

表 2 一些文献中报道的颗粒增强钨合金在瞬态热负荷作用下的开裂阈值

Table 2 Cracking threshold of some reported particle-reinforced tungsten alloys under transient thermal load

Alloy	State	Crack thresholds/ ($\text{GW}\cdot\text{m}^{-2}$)	Ref.
ITER W	—	0.22–0.33	[53]
W	As sintered	0.33–0.55	[54]
W-ZrC	As rolled	0.88–1.1	[52]
W-ZrC	As swaged	0.22–0.44	[52]
W- Y_2O_3	As sintered	0.42–0.53	[55]
W- La_2O_3	As sintered	0.17–0.22	[56]
W-TaC	As rolled and annealed	0.33–0.44	[41]

3 总结与展望

颗粒强化钨合金作为未来聚变装置用重要候选材料之一, 在力学性能和导热性能方面仍然具有一定的不足。而轧制加工可以有效降低颗粒增强钨合金 DBTT 和提高其在高热流环境中的力学性能稳定性, 为制备未来聚变装置用高性能颗粒增强钨合金提供了一种可靠加工方法。轧制加工后的钨基体中产生的可动位错密度和小角度晶界密度的增加等, 显著降低了颗粒增强钨合金的 DBTT, 改善了材料的韧性。而且, 由于颗粒掺杂对晶粒细化引起的热导率降低可以在轧制加工后得到很好改善。轧制变形过程中产生的组织和性能各向异性对热导率的影响也可以通过控制轧制工艺, 获得合适的晶体取向来消除。从 Xie 等^[40]在轧制 W- Y_2O_3 合金中

添加 Zr 元素的研究中发现, 微量合金元素的添加可以进一步降低颗粒增强钨合金的 DBTT。因此, 通过添加微量合金化元素进行复合掺杂, 结合合适的轧制工艺或许可以进一步改善颗粒增强钨合金的性能。

目前关于轧制加工对颗粒增强钨合金力学性能、热导率和抗热冲击损伤性能的研究, 主要是通过热轧加工制备合金试样。理论上, 在没有回复和再结晶过程的冷轧加工对材料韧性的改善应该优于热轧加工, 因此, 如果可以制备具有一定韧性的钨基复合材料, 如添加少量的 Re 元素或韧型纤维对颗粒增强钨合金可加工性的改善作用, 将有希望进一步通过冷轧工艺制备不含动态回复与再结晶过程的高性能钨合金。而且轧制过程中, 不同面的变形程度存在差异, 轧制取向和织构对颗粒增强钨合金性能各向异性的研究是十分必要的。此外, 不同轧制工艺, 包括轧制速度、轧制道次、道次压下量以及开轧和终轧温度等工艺参数对钨基复合材料性能的影响, 也需要在不久的将来进行深入研究, 完善并建立相应的参数和性能数据库, 为未来制备具有良好力学性能、抗热冲击和辐照损伤性能的先进颗粒增强钨合金提供数据参考与方案借鉴。

REFERENCES

- [1] PACCHIONI G. The road to fusion[J]. Nature Reviews Physics, 2019, 1(6): 360–362.
- [2] WANG S M, LI J S, WANG Y, et al. Thermal damage of tungsten-armored plasma-facing components under high heat flux loads[J]. Scientific Reports, 2020, 10(1): 1–10.
- [3] DAS S. Recent advances in characterising irradiation damage in tungsten for fusion power[J]. SN Applied Sciences, 2019, 1(12): 1614.
- [4] YAO G, TAN X Y, LUO L M, et al. Influence of helium ion irradiation damage behavior after laser thermal shock of W-2%Vol Y_2O_3 composites[J]. Progress in Nuclear Energy, 2020, 121: 103241.
- [5] YAO G, LUO L M, TAN X Y, et al. Effect of Y_2O_3 particles on the helium ion irradiation damage of W-2% Y_2O_3 composite prepared by wet chemical method[J]. Materialia, 2019, 6: 100268.
- [6] HIRAOKA Y, KURISHITA H. Low-temperature strengths and ductility of various tungsten sheets[J]. Advances in

- Materials Science and Engineering, 2011, 2011: 509457.
- [7] TRAVERE J M, AUMEUNIER M H, JOANNY M, et al. Imaging challenges for ITER plasma-facing component protection [J]. Fusion Science and Technology, 2013, 64: 735–740.
- [8] PO G, CUI Y N, RIVERA D, et al. A phenomenological dislocation mobility law for bcc metals[J]. Acta Materialia, 2016, 119: 123–135.
- [9] GLEBOVSKY V G, SEMENOV V N, LOMEYKO V V. Influence of the crystallization conditions on the structural perfection of molybdenum and tungsten single crystals[J]. Journal of Crystal Growth, 1988, 87(1): 142–150.
- [10] SETYAWAN W, KURTZ R J. Effects of transition metals on the grain boundary cohesion in tungsten[J]. Scripta Materialia, 2012, 66(8): 558–561.
- [11] GIANNATTASIO A, YAO Z, TARLETON E, et al. Brittle-ductile transitions in polycrystalline tungsten[J]. Philosophical Magazine, 2010, 90(30): 3947–3959.
- [12] CHANDRA P, HONGSUK L, MILAD A, et al. An analysis of the influence of grain boundary strength on microstructure dependent fracture in polycrystalline tungsten[J]. International Journal of Fracture, 2016, 199(1): 1–20.
- [13] BULTER B G, PARAMORE J D, LIGDA J P, et al. Mechanisms of deformation and ductility in tungsten—A review[J]. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials, 2018, 75: 248–261.
- [14] REN C, FANG Z Z, KOOPMAN M, et al. Methods for improving ductility of tungsten—A review[J]. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials, 2018, 75: 170–183.
- [15] WU Y C, HOU Q Q, LUO L M, et al. Preparation of ultrafine-grained/nanostructured tungsten materials: An overview[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2019, 779: 926–941.
- [16] 吴玉程. 面向等离子体 W 材料改善韧性的方法与机制[J]. 金属学报, 2019, 55: 2.
WU Yu-cheng. The routes and mechanism of plasma facing tungsten materials to improve ductility[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2019, 55: 2.
- [17] XU Q, LUO L M, CHEN Z, et al. D2 retention behavior and microstructural evolution of W-2wt.%Y₂O₃ alloy during He-ion irradiation at high temperatures[J]. Journal of Nuclear Materials, 2020, 539: 152273.
- [18] XU Q, DING X Y, LUO L M, et al. D2 retention and microstructural evolution during He irradiation in candidate plasma facing material W-La₂O₃ alloy[J]. Journal of Nuclear Materials 2017, 496: 227–233.
- [19] XIE Z M, MIAO S, LIU R, et al. Recrystallization and thermal shock fatigue resistance of nanoscale ZrC dispersion strengthened W alloys as plasma-facing components in fusion devices[J]. Journal of Nuclear Materials, 2017, 496: 41–53.
- [20] LUO L M, TAN X Y, CHEN H Y, et al. Preparation and characteristics of W-1wt.% TiC alloy via a novel chemical method and spark plasma sintering[J]. Powder Technology, 2015, 273: 8–12.
- [21] TAN X Y, LUO L M, LU Z L, et al. Development of tungsten as plasma-facing materials by doping tantalum carbide nanoparticles[J]. Powder Technology, 2015, 269: 437–442.
- [22] LIU R, XIE Z M, HAO T, et al. Fabricating high performance tungsten alloys through zirconium micro-alloying and nano-sized yttria dispersion strengthening[J]. Journal of Nuclear Materials, 2014, 451: 35–39.
- [23] HU Y J, MICHAEL, FELLINGER R, et al. Solute-induced solid-solution softening and hardening in bcc tungsten[J]. Acta Materialia, 2017, 141: 304–316.
- [24] KAPPACHER J, LEITNER A, KINER D, et al. Thermally activated deformation mechanisms and solid solution softening in W-Re alloys investigated via high temperature nanoindentation[J]. Materials and Design, 2020, 189: 108499.
- [25] BARABASH V, AKIBA M, MAZUL I, et al. Selection, development and characterisation of plasma facing materials for ITER[J]. Journal of Nuclear Materials, 1996, 133: 718–723.
- [26] OH Y, KWAK N, KEUNHO L, et al. Ductility enhancement of tungsten after plastic deformation[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2019, 787: 801–814.
- [27] YAO G, LUO L M, TAN X Y, et al. Effect of Y₂O₃ particles on the helium ion irradiation damage of W-2%Y₂O₃ composite prepared by wet chemical method[J]. Materialia, 2019, 6: 100268.
- [28] LIU R, XIE Z M, YAO X, et al. Effects of swaging and annealing on the microstructure and mechanical properties of ZrC dispersion-strengthened tungsten[J]. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials, 2018, 76: 33–40.
- [29] BATTABYAL M, SCHAUBLIN R, SPTIG P, et al. W-2wt.%Y₂O₃ composite: Microstructure and mechanical

- properties[J]. *Materials Science and Engineering A*, 2012, 538: 53–57.
- [30] WANG Y K, XIE Z M, WANG M M, et al. The superior thermal stability and tensile properties of hot rolled W-HfC alloys[J]. *International Journal of Refractory Metals & Hard Materials*, 2019, 81: 42–48.
- [31] KOUZELI M, MORTENSEN A. Size dependent strengthening in particle reinforced aluminium[J]. *Acta Mater*, 2002, 50: 39–51.
- [32] RUPP D, MONIG R, GRUBER P, et al. Fracture toughness and microstructural characterization of polycrystalline rolled tungsten[J]. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 2010, 28(6): 669–673.
- [33] GAGANIDZE E, RUPP D, AKTAA J. Fracture behaviour of polycrystalline tungsten[J]. *Journal of nuclear materials*, 2014, 446(1/3): 240–245.
- [34] YIN C, TEREYTYEY D, PARDOEN T, et al. Ductile to brittle transition in ITER specification tungsten assessed by combined fracture toughness and bending tests analysis[J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2019, 750: 20–30.
- [35] LIU B, RAABE D, EISENLOHR P, et al. Dislocation interactions and low-angle grain boundary strengthening[J]. *Acta Materialia*, 2011, 59(19): 7125–7134.
- [36] ZHANG G J, SUN Y J, ZUO C, et al. Microstructure and mechanical properties of multi-components rare earth oxide-doped molybdenum alloys[J]. *Materials Science and Engineering A*, 2008, 483: 350–352.
- [37] ZHAO M Y, ZHOU Z J, ZHONG M, et al. Effect of hot rolling on the microstructure and fracture behavior of a bulk fine-grained W-Y₂O₃ alloy[J]. *Materials Science and Engineering A*, 2015, 646: 19–24.
- [38] ISHIJIMA Y, KURISHITA H, YUBUTA K, et al. Current status of ductile tungsten alloy development by mechanical alloying[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2004, 329/333: 775–779.
- [39] MA E. Instabilities and ductility of nanocrystalline and ultrafine-grained metals[J]. *Scripta Materialia*, 2003, 49: 663–668.
- [40] XIE Z M, LIU R, ZHANG T, et al. Achieving high strength/ductility in bulk W-Zr-Y₂O₃ alloy plate with hybrid microstructure[J]. *Materials and Design*, 2016, 107: 144–152.
- [41] XIE Z M, MIAO S, ZHANG T, et al. Recrystallization behavior and thermal shock resistance of the W-1.0 wt% TaC alloy[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2018, 501: 282–292.
- [42] LANG S T, YAN Q Z, SUN N B, et al. Microstructure, basic thermal-mechanical and Charpy impact properties of W-0.1wt%TiC alloy via chemical method[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2016, 660: 184–192.
- [43] WANG R, XIE Z M, LIU R, et al. Effects of ZrC content on the mechanical properties and microstructures of hot-rolled W-ZrC composites[J]. *Nuclear Materials and Energy*, 2019, 20: 100705.
- [44] BARABASH V, AKIBA M, MAZUL I, et al. Selection, development and characterisation of plasma facing materials for ITER[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 1996, 133/237(Part 1): 718–723.
- [45] OKSIUTA Z, PERKOWSKI K, OSUCHOWSKI M, et al. Microstructure and thermal properties of mechanically alloyed W-1%TiC powder consolidated via two-step HIPping[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2018, 126: 51–58.
- [46] MIAO S, XIE Z M, YANG X D, et al. Effect of hot rolling and annealing on the mechanical properties and thermal conductivity of W-0.5wt.% TaC alloys[J]. *Int. Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 2016, 56: 8–17.
- [47] OGORODNIKOVA O V, ROTH J, MAYER M. Deuterium retention in tungsten in dependence of the surface conditions[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2003, 313: 469–477.
- [48] YAO G, TAN X Y, FU M Q, et al. Isotropic thermal conductivity in rolled large-sized W-Y₂O₃ bulk material prepared by powder metallurgy route and rolling deformation technology[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2018, 137: 325–330.
- [49] LINKE J M, TAKESHI H, RODIG M, et al. Performance of plasma-facing materials under intense thermal loads in tokamaks and stellarators[J]. *Fusion Science and Technology*, 2004, 46: 142–151.
- [50] ROEDIG M, KUPRIYANOY I, LINKE J, et al. Simulation of transient heat loads on high heat flux materials and components[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2011, 417: 761–764.
- [51] WIRTZ M, LINKE J, LOEWENHOFF T, et al. Transient heat load challenges for plasma-facing materials during long-term operation[J]. *Nuclear Materials and Energy*, 2017, 12: 148–155.
- [52] XIE Z M, LIU R, MIAO S, et al. High thermal shock resistance of the hot rolled and swaged bulk W-ZrC alloys[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2016, 469: 209–216.

- [53] KIKUCHI Y, SAKUMA I, IWAMOTO D, et al. Surface cracking and melting of different tungsten grades under transient heat and particle loads in a magnetized coaxial plasma gun[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2013, 438: S715–S718.
- [54] UYTENDENHOUWEN I, DECRETON M, HIRAI T, et al. Influence of recrystallization on thermal shock resistance of various tungsten grades[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2007, 363: 1099–1103.
- [55] LIN J S, ZHAO M L, LUO L M, et al. Thermal shock behavior of W-0.5wt%Y₂O₃ alloy prepared via a novel chemical method[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2016, 479: 616–622.
- [56] ZHANG X X, YAN Q Z. Morphology evolution of La₂O₃ and crack characteristic in W-La₂O₃ alloy under transient heat loading[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2014, 451: 283–289.

Research progress on influence of rolling process on performance of particle-reinforced tungsten alloys for fusion devices

LUO Lai-ma^{1,2}, ZHAO Zhi-hao¹, YAO Gang¹, ZAN Xiang^{1,2}, ZHU Xiao-yong²,
CHENG Ji-gui^{1,2}, WU Yu-cheng^{1,2,3}

(1. School of Materials Science and Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China;

2. National-Local Joint Engineering Research Centre of Nonferrous Metals and Processing Technology,
Hefei 230009, China;

3. Key Laboratory of Interface Science and Engineering in Advanced Materials, Ministry of Education,
Taiyuan, 030024, China)

Abstract: Tungsten (W) is considered to be the most ideal candidate material for fusion devices due to its high melting point, high sputtering threshold, and good thermal conductivity. A series of microstructure transformations of particle-reinforced tungsten alloy during rolling process will have a certain influence on the properties of the materials. This article reviews the effects of rolling on the mechanical properties, thermal conductivity and resistance to thermal shock damage of particle-reinforced tungsten alloys, and points out the research prospects and development directions of tungsten materials for thermonuclear fusion reactors.

Key words: plasma-facing materials; particle-reinforced tungsten alloys; rolling process; microstructure; properties

Foundation item: 国家重点研发计划磁约束聚变能发展专项(2017YFE0302600, 2019YFE03120004); 国家自然科学基金面上项目(51674095)

Received date: 2020-10-12; **Accepted date:** 2021-04-18

Corresponding author: LUO Lai-ma; Tel: +86-551-62902604; E-mail: luolaima@126.com

(编辑)