

钨涂层面面对等离子体材料损伤演变行为

种法力¹, 陈俊凌², 郑学斌³

(1. 徐州工程学院, 江苏 徐州 221000)
(2. 中国科学院等离子体研究所, 安徽 合肥 230031)
(3. 中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 200050)

摘要: 利用等离子体喷涂技术制备了钨涂层面面对等离子体材料, 并对涂层基本性能进行了表征, 主要包括气孔率、相对密度、结合强度、热导率、硬度分布, 进而研究主动水冷钨涂层在热负荷服役条件下的损伤演变行为。研究发现, 直接水冷钨涂层内部层与层之间的开裂、分层是涂层失效的原因, 损伤演变过程为柱状晶体再结晶并长大、层间微裂纹出现、裂纹扩展和气孔出现、最后材料分层、失效。间接水冷钨材料的热负荷性能受到很大限制, 且疲劳性能降低, 失效形式是涂层开裂或脱落, 甚至铜基体整体熔化。

关键词: 钨涂层; 等离子体喷涂技术; 核聚变

中图分类号: TG146

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2016)07-1765-06

磁约束核聚变实验装置的面对等离子体部件 PFC (Plasma facing components) 主要由 2 部分组成: 面对等离子体材料和热沉材料。由于钨 (W) 具有高熔点、高热导率、低溅射率、低燃料滞留等优点, 被公认为最有前景的核聚变实验装置面对等离子体材料^[1]。并且实验发现钨能够承受 10 MW/m² 的稳态热负荷辐照, 能够承受异常瞬态热能量作用, 比如等离子体破裂, 边缘局域膜等异常事件^[2]。铜 (Cu) 及其合金高温下有较好的热力学性能而被广泛认为是比较合适的热沉材料。然而由于钨铜之间杨氏模量和热膨胀系数相差很大, 当 W/Cu PFC 承受热负载时, 在连接处产生热应力。较大的热应力可能导致面对等离子体材料与热沉材料结合界面的开裂或面对等离子体材料的脱落等破坏。为了克服钨材料脆性、比重大的缺点以及实现 W/Cu 有效连接, 等离子体喷涂技术被用来制备 W/Cu 面对等离子体部件, 此技术工艺简单成熟、适合喷涂大而形状复杂的工件且可进行涂层破坏处的定点修复^[3]。

虽然对钨用作核聚变装置面对等离子体材料研究很多, 但都是钨面对等离子体材料的制备方法^[4-6], 以及热负荷承载能力的研究^[7-9], 鲜有报道面对等离子体钨材料损伤机理, 特别是在疲劳热负荷作用其损伤演变行为的研究。本研究介绍了等离子体喷涂钨涂层的制备, 表征了钨涂层基本性能, 并对等离子体喷涂钨

涂层在主动水冷 (直接水冷, 间接水冷) 服役环境下的损伤演变过程进行了详细分析。该研究对钨涂层在核聚变装置中的应用积累了重要的数据, 并为更先进的 PFC 提出了设计优化目标。

1 实验

钨涂层采用真空等离子体喷涂 (vacuum plasma spraying, VPS) 技术制备, 首先对铜基体进行喷砂粗化处理, 然后超声波清洗和干燥, 最后进行喷涂涂层制备。钨粉平均粒径为 40 μm, 为了增强基体与涂层的结合性能, 钨/铜混合粉作为适配层喷涂到基体上, 喷涂参数如表 1 所示。

钨涂层相对密度通过阿基米德排水法测定, 其相对密度高达 88%; 气孔率与孔径分布利用 AUTOPORE IV 9500 型压汞仪测量, 真空等离子体喷涂钨涂层气孔

表 1 钨涂层主要喷涂参数

Table 1 Main parameters of Plasma Sprayed tungsten coating

Plasma parameters	Value
Plasma gas Ar/L min ⁻¹	35~45
Plasma gas H ₂ /L min ⁻¹	10~20
Spraying power/kW	40~50
Spraying distance/mm	200~300
Chamber atmosphere	Ar
Chamber pressure/kPa	20

收稿日期: 2015-07-12

基金项目: 国家自然科学基金 (11205130); 江苏省“青蓝工程”资助

作者简介: 种法力, 男, 1977 年生, 博士, 副教授, 徐州工程学院, 江苏 徐州 221000, 电话: 0516-83201551, E-mail: flchong2008@163.com

率约为 7.4%，且孔隙分布较窄，主要集中在 0.1~1 μm，如图 1 所示。由于喷涂功率决定了钨粉颗粒熔化状态，因此喷涂功率是影响涂层气孔大小及其分布的主要原因。H₂ 作为等离子体源，气流量的大小直接影响粒子熔化程度，H₂ 流量的减小必然导致粒子熔化状态，甚至可能导致不能充分熔化，或者出现未熔化粒子出现在涂层中。Ar 流量影响粒子飞行速度，进而影响粒子沉积时对上层涂层的挤压力，因此 Ar 对涂层气孔率也会产生影响，同时 Ar 流量对涂层与基体结合和涂层沉积形状也会产生影响；激光热导仪测定室温下钨涂层热导率约为 80 W/m K；在拉伸试验机上测定涂层与基体结合强度为 45 MPa，其断裂面处于钨/铜适配层与铜基体界面处；沿涂层厚度方向进行维氏硬度测定，载荷 100 N，持续 10 s，每一厚度方向测定 5 个点，然后求该厚度平均硬度。由于涂层气孔分布不均匀性，以及残余应力等因素影响，涂层硬度在厚度方向呈现出不规律性，最大值为 315 MPa，最小值为 240 MPa。

利用电子束热负荷实验平台进行钨面对等离子体材料损伤实验，4 组 W/Cu 样品热负荷设计如表 2 所示。电子束辐照面积 20 cm×20 cm，实验过程中温度变化通过红外测温仪和热电偶测量。直接水冷 (direct cooling) W/Cu 样品热沉尺寸 30 mm×30 mm×24 mm，侧面中心有一个直径 10 mm 水冷通道，进水温度 20 °C，水流速度 10 m/s，如图 2 所示。间接水冷 (indirect

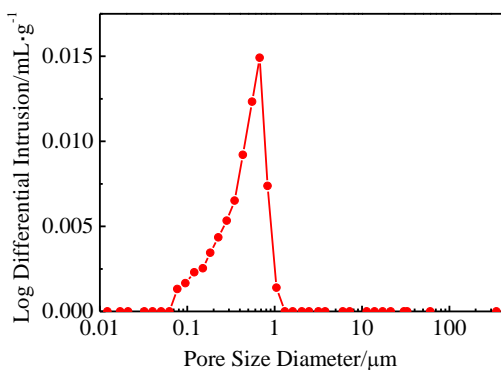


图 1 钨涂层孔径分布

Fig.1 Pore size distribution of VPS-W coating

表 2 钨涂层样品及实验设计
Table 2 W coating samples and condition of heat flux tests

Sample	Thickness/ mm	Heat flux /MW m ⁻²	Pulse/ interval/s	Cycle	Cooling condition
W0	1.0	10	200/300	100	Direct
W1	0.6	7.5	30	1	Indirect
W2	0.8	7.5	20/600	3	Indirect
W3	1	5	300	1	Indirect



图 2 直接水冷等离子体喷涂 W/Cu 样品 (W0)

Fig.2 Plasma sprayed W/Cu sample (W0) with the direct cooling

cooling) W/Cu 样品通过螺钉机械连接到不锈钢热沉上，中间使用软石墨纸来增强间接水冷部件的传热效果。

2 结果与分析

2.1 直接水冷钨涂层损伤演变

图 3 为热负荷疲劳实验前后 VPS-W 涂层样品表面 SEM 照片。热负荷实验前，钨涂层表面未出现裂纹和孔洞等缺陷，经过 5 次疲劳实验后微裂纹生成，虽然材料的多孔性以及涂层塑性变形有助于阻止裂纹的扩展，但是 20 次、50 次、100 次不断重复疲劳变形还是引起裂纹继续扩展。在 50 次实验后主裂纹形成，然后在主裂纹附近出现很多次裂纹，并彼此交织。从裂纹放大图可以发现，由于涂层内层与层边界的结合较脆弱，裂纹沿着喷涂粒子边界延伸。

等离子体喷涂钨涂层断面损伤演变过程如图 4 所示。等离子体喷涂钨涂层层状结构呈现“圆饼”状，钨粒子熔化充分，表面未观察到未熔化或半熔化的粒子，层与层之间紧密结合，没有出现分层或脱落剥离的现象。钨涂层断面层状结构以及层内沿喷涂方向竖直柱状晶体结构清晰可见，柱状晶体之间结合紧密，孔隙较少。这也验证了真空喷涂钨涂层气孔率较低，以及涂层结合强度较高的结果。同时，涂层柱状晶结构被认为是有利于增强涂层的传热效果^[10]。经历 5 次疲劳实验后发现接近表面的柱状晶体长大的现象，通过疲劳实验钨涂层温度数据图 (如图 5 所示) 可以看出钨涂层重结晶温度是在约 1200 °C，重结晶现象降低了钨涂层的热负荷性能，引起继续疲劳加载时涂层严重的损伤：层与层之间出现微裂纹扩展、气孔，如图 4d 所示。在 50 次疲劳实验后，微裂纹扩展、层间开裂、气孔聚合成孔洞，涂层样品整体传热能力降低，表面温度和体温度升高，表面温度从 1300 °C 升高到 1500 °C。虽然在 50 次实验前，晶体经历了长大、微裂纹等破坏现象，但是对 W/Cu 样品整体传热影响较小，温度仅仅从 1200 °C 升高到 1300 °C。虽然裂纹的

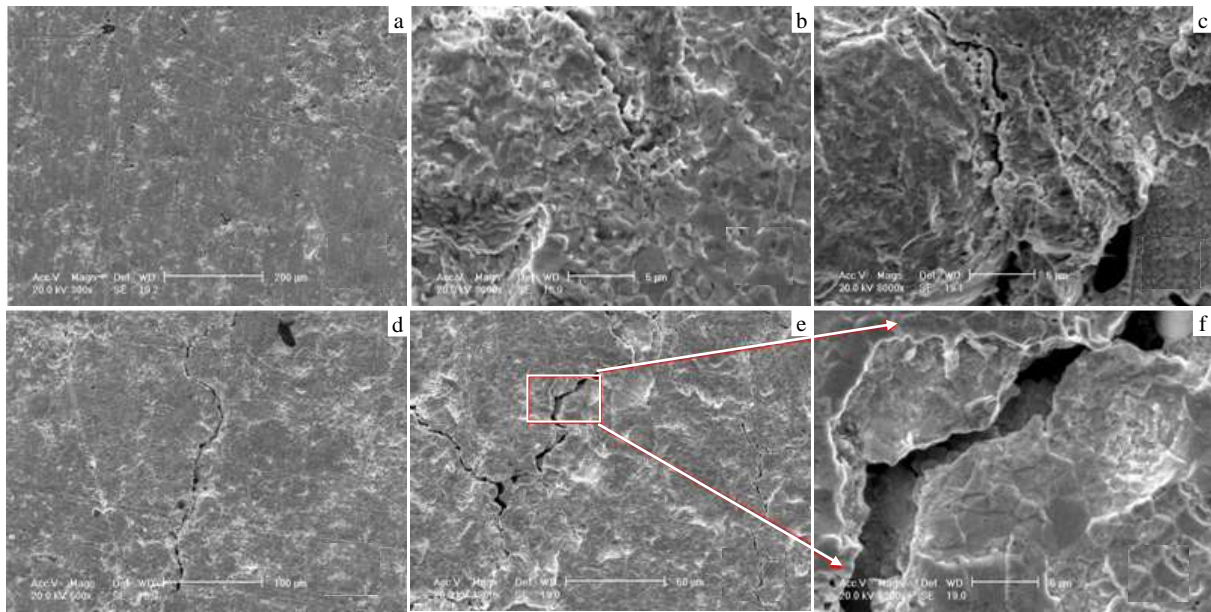


图 3 直接水冷钨涂层 (W0) 表面损伤演变 SEM 照片

Fig.3 Surface damage evolution SEM images of W coating (W0) with the direct cooling: (a) 0 cycle, (b) 5 cycles, (c) 20 cycles, (d) 50 cycles, (e) 100 cycles, and (f) local magnification of Fig.3e

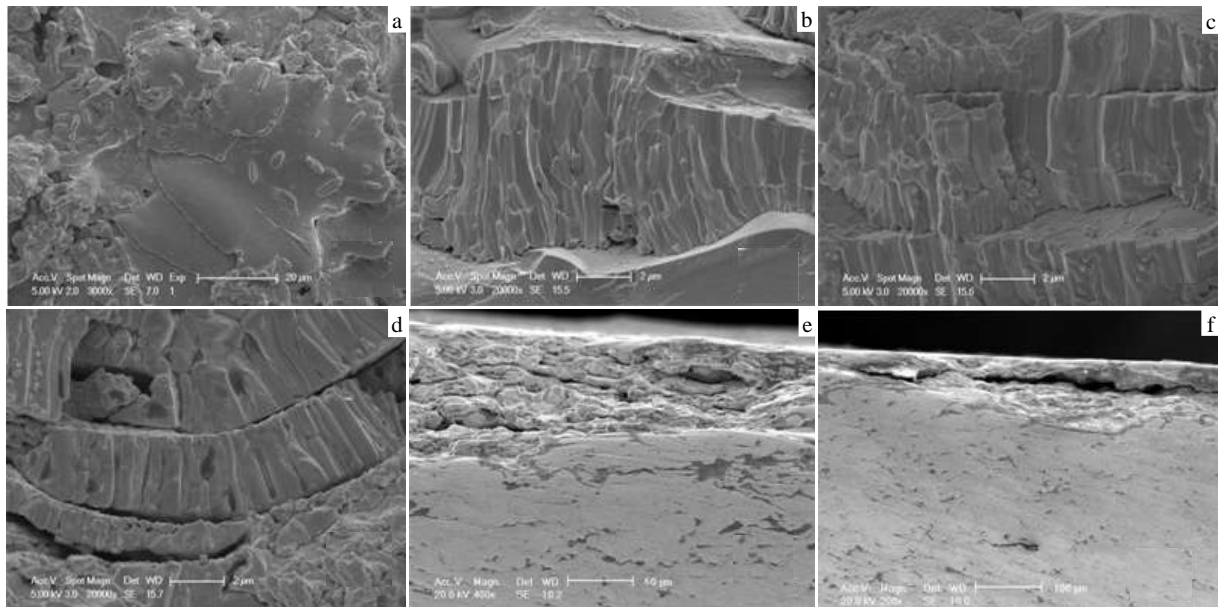


图 4 直接水冷钨涂层 (W0) 断面损伤演变 SEM 照片

Fig.4 Cross section damage evolution SEM images of W coating (W0) with the direct cooling: (a) the surface, (b) the original cross section, (c) 5 cycles, (d) 20 cycles, (e) 50 cycles, and (f) 100 cycles

形成消耗了涂层内的弹性应变能，但在 50 次到 100 次的热负荷加载过程中，反复热应力加载和缺陷不断出现，使得涂层热负荷性能严重降低，在 100 次疲劳实验后涂层分层，材料失效，表面温度快速升高，超出测温仪测量范围。

通过对直接水冷条件下的钨涂层样品表面和断面损伤演变行为的分析可以判断：虽然涂层表面和内部都出现了损伤，但是表面裂纹不是涂层材料失效的主要原因，涂层内部层与层之间的开裂、分层才是涂层失效的主要原因。而且涂层内部裂纹以及分层等破坏

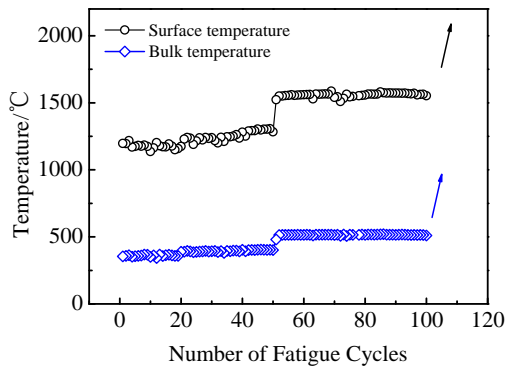


图 5 钨涂层样品 (W0) 疲劳实验温度分布

Fig.5 Temperature distribution of W coating (W0) under the fatigue tests

形式严重影响了传热, 导致表面温度抬升, 加剧了表面损伤程度。钨涂层损伤演变过程为柱状晶体再结晶并长大、层间微裂纹出现、裂纹扩展和气孔出现、最后材料分层、失效, 其中伴随着表面裂纹的产生和扩展过程。

2.2 间接水冷钨涂层损伤演变

间接水冷条件下, 等离子体喷涂钨涂层损伤演变为如图 6 所示。W1 样品在 7.5 MW/m^2 热负荷下, 经历 30 s 后基体铜熔化, 涂层与基体脱落。铜基体较大的膨胀变形对涂层产生较大的拉应力, 同时液态的体积膨胀对涂层产生向外的推力, 但是较厚的涂层以及较好的力学性能保证了涂层没有出现断裂破坏而最

终导致涂层的整体脱落。表面微观分析仅发现一条裂纹, 而且是沿钨层状结构边界开裂 (如图 6a 所示), 所以可以判断这主要是由于局部残余应力所致。W2 样品在 7.5 MW/m^2 、20 s 条件下进行 3 次重复实验表面没出现任何损伤, 也没发现基体脱落现象 (如图 6b 所示), 但钨铜界面基体熔化, 边缘分层损伤出现 (如图 6c 所示)。在电子束作用区域下方, 铜基体出现局部熔化和严重塑性变形, 在冷却过程中因凝固收缩而产生的拉应力导致界面局部裂纹出现。W2 样品钨涂层与铜基体界面边缘处出现宽度约为 $50 \mu\text{m}$ 、长约 5 mm 的开裂分层 (如图 6d)。在 5 MW/m^2 、300 s 的电子束作用过程中, W3 没出现破坏现象。

间接水冷条件下, 钨涂层温度分布有限元仿真分析如图 7 所示, 在 23 s 后 W/Cu 铜基体温度超过铜熔点, 所以 W1 样品在电子束作用区域下方的铜先熔化, 随着时间的延长 (从第 23~30 s) 熔化区域扩展, 最终导致铜基体的整体熔化。W2 样品 20 s 辐照时间使其基体温度接近熔点, 且没有时间积累, 因此 W2 基体仅仅出现局部熔化裂纹, 但是在 3 次反复熔化膨胀, 冷却收缩的拉力作用下, 边缘出现开裂分层的损伤。间接水冷条件下 W3 样品可以达到热平衡状态, 并且铜基体温度低于其熔点, 所以基体没出现熔化破坏。与 W1 和 W2 相比, W3 涂层热负荷热应力比较小, 而且没有疲劳损伤机制, 所以 W3 涂层界面以及表面也没出现损伤。

间接水冷条件下, 等离子体喷涂钨的热负荷性能

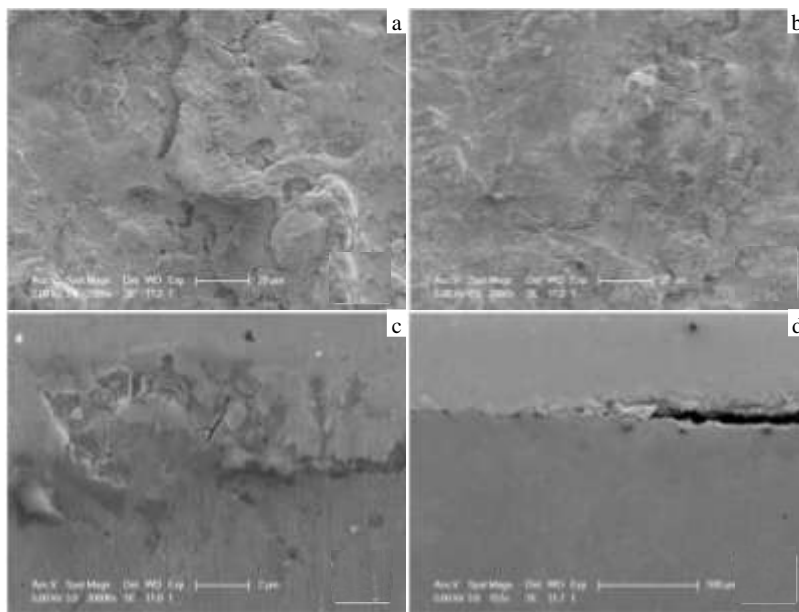


图 6 间接水冷钨涂层损伤演变 SEM 照片

Fig.6 Damage evolution SEM images of VPS-W coatings with the indirect cooling: (a) W1 surface, (b) W2 surface, (c) W2 interface, and (d) W2 edge

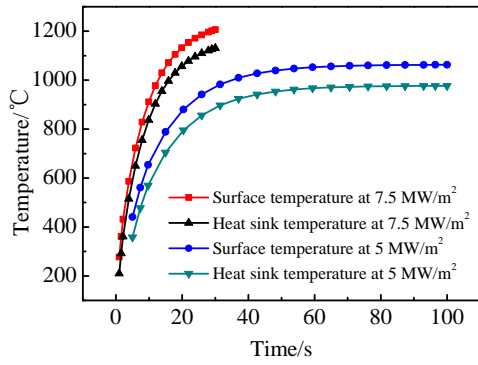


图 7 间接水冷 W/Cu 模块温度

Fig.7 Temperature evolution of W/Cu module with the heat load time increasing

受到很大限制：功率密度极限为 7.5 MW/m^2 ，且疲劳性能降低。失效形式是涂层开裂或脱落，甚至铜基体整体熔化。

不同水冷条件下（直接和间接水冷），等离子体喷涂 W/Cu 模块温度分布的不同引起膨胀系数不匹配性差距增大：室温下铜膨胀系数为钨的 3.7 倍，在 $1130 \text{ }^\circ\text{C}$ 时则是钨的 6.7 倍。间接水冷时，铜基体温度较高 ($>1000 \text{ }^\circ\text{C}$, 7.5 MW/m^2)，而直接水冷时，界面温度约为 $450 \text{ }^\circ\text{C}$ (10 MW/m^2)，所以与直接水冷相比，间接水冷 W/Cu 模块界面热膨胀系数不匹配热应力要大得多。有限元仿真（图 8）分析也证明了这一点：即使在 7.5 MW/m^2 能流密度下，间接水冷时 W/Cu 模块最大热应力 (401 MPa) 要比直接水冷高出 2 倍多。

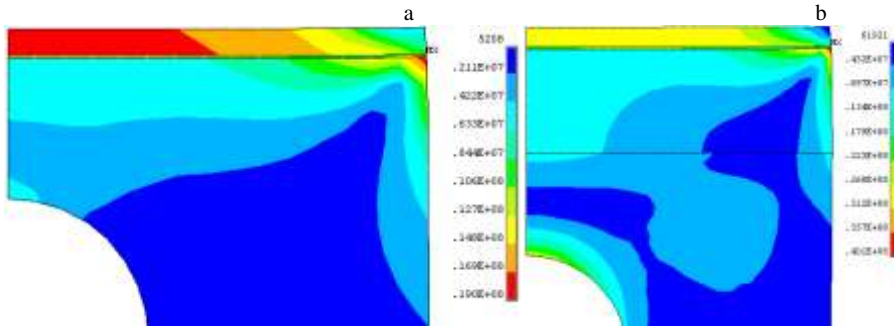


图 8 W/Cu 模块应力分析

Fig.8 Thermal stress analysis of W/Cu module: (a) under the direct cooling and (b) under the in-direct cooling

因此，可以判断，由于热膨胀系数不匹配性引起的热应力是导致间接水冷 W/Cu 材料失效的主要原因。

3 结 论

1) 等离子体喷涂钨涂层呈现柱状晶结构，层与层间结合紧密，无裂纹孔隙的缺陷存在，涂层具有优异的性能：气孔率 7.4%，热导率 80 W/m K ，结合强度 45 MPa 。

2) 疲劳实验后，直接水冷钨涂层表面和层内都出现了损伤，其中涂层内部层与层之间开裂、分层是涂层失效的形式。其损伤演变过程为柱状晶体再结晶并长大、层间微裂纹出现、裂纹扩展和气孔出现、最后材料分层、失效，其中伴随着表面裂纹的产生和扩展过程。

3) 间接水冷等离子体喷涂钨的热负荷性能受到很大限制：功率密度极限为 7.5 MW/m^2 ，且疲劳性能降低。由于热膨胀系数不匹配性引起的热应力是导致间接水冷 W/Cu 材料失效的主要原因，其失效形式是涂层开裂或脱落，甚至铜基体整体熔化。

参考文献 References

[1] Chong F L, Chen J L, Li J G. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2007, 363-365: 1201

[2] Uytendhouwen I, Decreton M, Hirai T *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2007, 363-365: 1099

[3] Matějčiček Jiří, Koza Yoshie, Weinzettl Vladimír. *Fusion Engineering and Design*[J], 2005, 75-79: 395

[4] Barabash V, Akiba M, Cardella A *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2000, 283-287: 1248

[5] Saito S, Fukaya K, Ishiyama S *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2002, 307-311: 1542

[6] Itoh Y, Takahashi M, Takano H. *Fusion Engineering and Design*[J], 1996, 31: 279

[7] Boscary J, Suzuki S, Nakamura K *et al.* *Fusion Engineering and Design*[J], 1998, 39-40: 537

[8] Salavy J F, Giancarli L, Merola M *et al.* *Fusion Engineering and Design*[J], 2003, 66-68: 277

[9] Greuner H, Bolt H, Boswirth B *et al.* *Fusion Engineering and Design*[J], 2005, 75-79: 333

Damage Evolution of Tungsten as Plasma Facing Material for Fusion Device

Chong Fali¹, Chen Junling², Zheng Xuebin³

(1. Xuzhou Institute of Technology, Xuzhou 221000, China)

(2. Institute of Plasma Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

(3. Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China)

Abstract: Tungsten (W) coating plasma facing material (PFM) was fabricated on the copper (Cu) substrate by a plasma spraying technique, and the properties of the coating were characterized, including the coating porosity, the theoretical density, the bonding strength between tungsten coating and copper substrate, the thermal conductivity, and the Vickers micro-hardness distribution. And the damage evolution of the tungsten coatings with both of the direct and in-direct cooling condition was also investigated. The results indicate that the failure of W PFM with the direct cooling is attributed to the delamination between the lamellar layers, not the surface damage. The damage evolution of W PFM is as follows: the columnar crystals grow up, micro-cracks appear between the lamellar layers, then the lamellar layer delaminates and finally W PFM fails. But under the indirect cooling, the heat flux performance of W PFM is limited to 7.5 MW/m^2 , while that of the direct cooling W coating is 10 MW/m^2 . The main failure behavior is W coating detachment from Cu substrate, which is induced by Cu melting.

Key words: tungsten coating; plasma spraying technique; fusion

Corresponding author: Chong Fali, Ph. D., Associate Professor, Xuzhou Institute of Technology, Xuzhou 221000, P. R. China, Tel: 0086-516-83201551, E-mail: flchong2008@163.com