

四点弯曲法测量钨材料韧脆转变温度及其与其他测试方法的比较研究

耿祥^{1,2}, 罗广南², 王万景², 李强², 王纪超², 谢春意², 黄伶明²,
陈镇², 彭吴擎亮²

(1. 安徽大学 物质科学与信息技术研究院, 安徽 合肥 230039)

(2. 中国科学院 合肥物质科学研究院 等离子体物理研究所, 安徽 合肥 230031)

摘要: 针对聚变装置中钨材料的性能评价问题, 采用四点弯曲试验 (4PBT) 方法对钨材料的韧脆转变温度 (DBTT) 进行了测试和分析。首先, 基于对四点弯曲过程的应变率和强度随温度变化的分析获得了商用轧制纯钨的 DBTT。结果表明, 用标准四点弯曲法测得的工业轧制纯钨的 DBTT 值在 150 °C 以下, 低于相同材料的拉伸试验和冲击试验的测量值。然后对比不同加载速率的 4PBT 和拉伸试验的结果, 证实了不同的 DBTT 测试方法的加载速率依赖性。最后, 对测试方法影响 DBTT 测量的原因进行了分析和讨论。

关键词: 钨材料; 韧脆转变温度 (DBTT); 四点弯曲试验 (4PBT); 加载速率

中图分类号: TG146.4⁺11

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2021)11-4089-06

钨具有熔点高、溅射速率低、导热系数高等特点, 是未来聚变反应堆面向等离子体材料(PFM)的首选材料^[1]。但钨的缺点也很明显, 如韧脆转变温度 (DBTT) 高, 辐照脆化等^[2-6]。据报道, 在 20 MW/m² 条件下, 经过 300 次高热负荷循环试验后, 钨铜穿管部件上约 30% 的钨块发生了开裂^[7], 这将对聚变反应堆中钨材料的使用性能和寿命产生严重影响^[1, 8, 9]。

针对开裂行为的研究指出钨材料在高热循环过程中, 在温度低于 DBTT 阶段的脆性是导致开裂的主因。多种测试方法被用来获得钨的 DBTT, 如拉伸试验、冲击试验、弯曲试验、断裂试验、显微硬度等, 但不同测试方法得到的 DBTT 测量值差异可以达到几百摄氏度^[2, 3, 10-13]。

本研究首先采用 4PBT 测量钨材料的 DBTT, 弯曲试验一般用于评价相对脆性材料的强度和变形能力^[14], 国际热核实验堆 (ITER) 试图将该方法应用于其未来批量部件生产过程中, 对钨材料进行质量控制。其次采用拉伸试验和冲击试验 2 种方法进行对比研究; 最后, 讨论分析不同测试方法对钨材料 DBTT 测量的影响。

1 实验

四点弯曲法测量钨材料 DBTT 之前较少报道。ITER 组织基于其穿管型 (monoblock) 面向等离子体部件设计, 针对穿管钨块的尺寸 (28 mm × 28 mm × 12 mm) (如图

1), 提出了采用四点弯曲法测量钨材料的 DBTT, 用以监控部件生产期间不同供货商不同批次的钨材料质量一致性以及 monoblock 高热负荷试验后的取样测试。

表 1 列出了采用的 3 种测试方法的部分试验参数, 下面再针对具体试验方法及试样制备给出具体说明。在本研究中, 所有样品均取自安泰科技有限公司提供的同一批次 ITER 级商用轧制纯钨。轧制钨板采用“粉末冶金+变形加工”的方法制备, 其中通过粉末冶金的方法制备出合适的钨烧结坯料, 然后钨烧结坯料经锻造、轧制等变形加工成轧制钨板。钨板纯度 ≥ 99.95%, 密度 ≥ 19.0 g/cm³, 晶粒度达到 3 级或更细 (垂直于轧制方向)。

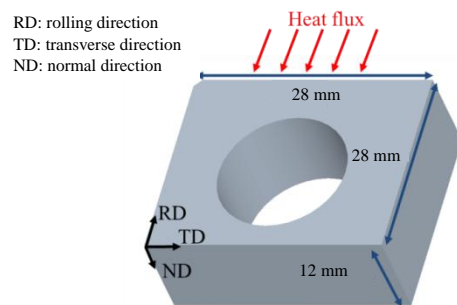


图 1 穿管钨块

Fig.1 Monoblock

收稿日期: 2020-11-22

基金项目: 国家重点研发计划磁约束核聚变能发展研究专项 (2017YFE0300604)

作者简介: 耿祥, 男, 1992 年生, 硕士生, 中国科学院合肥物质科学研究院等离子体物理研究所, 安徽 合肥 230031, 电话: 0551-65593108, E-mail: xiang.geng@ipp.ac.cn

表 1 3 种测试方法的具体参数

Test method	Standard	Sample size/mm	Loading rate
4PBT	ASTM C1161-13	1.5×2×26	0.2 mm/min
Tensile	ISO6892-2	Diameter: 3; Length: 15	1.5 mm/min
Charpy impact	GB/T 229-1994	55×10×10 V groove depth: 2	5 m/s

四点弯曲试验(4PBT)是根据 ASTM C1161-13 标准进行的, 该标准主要用于测量脆性材料在环境温度下的弯曲强度。按照此标准制备 1.5 mm×2 mm×26 mm 的小尺寸样品。考虑到轧制钨是各向异性的, 如图 2 所示, 四点弯曲试样长度平行于 RD, 压头移动方向平行 TD。在制备过程中, 样品 4 个面全部研磨到粗糙度 R_a 小于 0.8 μm , 磨削方向与试样的长度平行。本试验是在一种通用的拉伸试验机 (MTS, E44.204) 上进行的, 装置最大加载力为 10 kN, 精度为 0.5 级(测得的力值偏差小于 0.5%)。试验操作流程如下: (1) 试样放入测试炉后, 将炉内抽真空至 5 Pa 以下; (2) 氩气洗涤 2 次, 然后通氩气至常压, 以避免高温氧化; (3) 加热至测试温度后, 保温 1 h, 保证温度均匀; (4) 加载速度按照标准设定为 0.2 mm/min, 压头最大位移受夹具限制不超过 5 mm; 为了与其他测试方法对比, 增加了 2 个较高的加载速度, 4.5 和 50 mm/min。

由于四点弯曲法测量钨材料 DBTT 之前较少报道, 为了比较研究 4PBT 的结果, 分别按照 ISO6892-2 和 GB/T 229-1994 的标准进行了同一批次钨材料的拉伸试验和冲击试验。如图 3 所示, 为了尽量保证可比性, 拉伸试验和冲击试验的样品长度方向均平行于 RD, 冲击试验加载方向

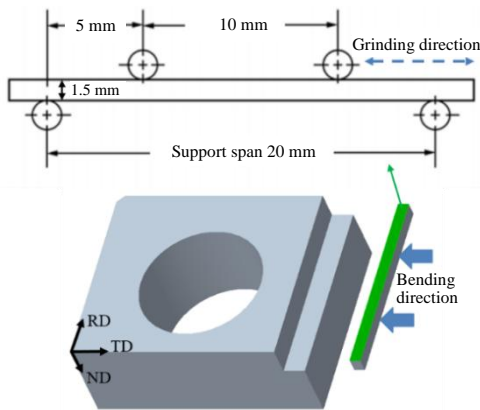


图 2 四点弯曲试样示意图

Fig.2 Schematic diagram of four-point bending sample

与 4PBT 相同。拉伸实验在真空环境中进行, 按照标准规定加载速率 1.5 mm/min 进行。冲击试验大气加热 (没有气氛保护), 按标准设置加热时温度补偿, 从加热炉取出后 5~6 s 内完成实验。

2 结果与讨论

2.1 四点弯曲标准试验

图 4 为工业轧制纯钨的四点弯曲标准试验 (加载速率为标准中规定的 0.2 mm/min 的测试组) 的原始结果和对应的弯曲试样。从图中可以看出, 当测试温度为 100 $^{\circ}\text{C}$ 时, 试样容易断裂, 变形小, 类似于完全脆性的陶瓷材料。当测试温度为 150 $^{\circ}\text{C}$ 时, 试样虽然有一定的塑性变形, 但也会断裂。当测试温度在 150 $^{\circ}\text{C}$ 以上时, 2 个试样被弯曲到最大位移且没有断裂。

为更清楚地显示韧性-脆性转变, 利用应力-位移数据和试样尺寸, 根据 ASTM C1161-13 标准, 用式(1)和式(2)计算了 4PBT 的最大应变率($\varepsilon/\%$)和强度(S/GPa)。

$$\varepsilon = 6ds / L^2 \tag{1}$$

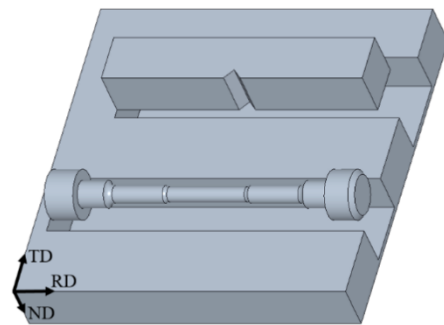


图 3 拉伸试验样品和冲击试验样品与轧制方向关系

Fig.3 Relationship between tensile test sample, impact test sample and rolling direction

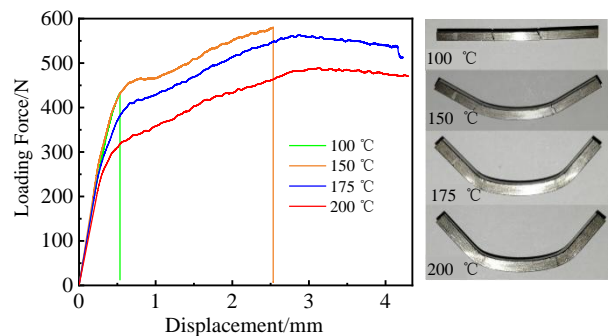


图 4 4PBT 结果

Fig.4 Results of 4PBT

$$S = \frac{3PL}{4bd^2} \tag{2}$$

式中, P/N 为断裂力, L/mm 为外支撑跨距, b/mm 为试件宽度, d/mm 为试件厚度, $s/mm\ min^{-1}$ 为上压头下压速度 (计算最大应变率时, 为最大位移)。

计算结果如图 5 所示。结果表明, 最大应变随测试温度的升高而增大。当试验温度等于或大于 175 °C 时, 最大应变不随温度变化, 试样具有完全韧性。随着试验温度的升高, 试样的强度先升高后降低。虽然样品在 150 °C 时断裂, 但样品的强度达到最大值。所以 4PBTT 得到的 DBTT 范围在 100 到 175 °C 之间, 即最高的脆性测试温度到最低的完全韧性测试温度之间。从图 4 中可以看到, 试样在 150 °C 时虽然发生了断裂, 但出现了明显的塑性变形, 因此试样在 150 °C 时已经具有韧性。图 6 展示了断面 SEM 照片, 虽然 100 和 150 °C 2 个样品的断面都主要是河流状的解理断裂, 但 150 °C 的样品断口发生了非常明显的塑性变形, 从矩形变成了梯形。所以作者取从 100 到 175 °C 中间值 137.5 °C 作为 DBTT。这个结果明显低于表 2 列出的其他文献报道的纯钨 DBTT。

2.2 3 种测试方法的测量结果比较

图 7 显示了 3 种不同方法的测试结果, 拉伸试验 DBTT 取最大应变大于 5% 的最低测试温度^[16], 为 200 °C; 冲击试验按照标准中取上冲击功平台和下冲击

功平台的中间值对应的温度作为 DBTT, 本研究的冲击试验没有得到上冲击功平台, 但 700 °C 时冲击功明显升高, 因此认为冲击试验得到的 DBTT 高于 700 °C。可以看出, 不同测试方法得到的 DBTT 的差值在 500 °C 以上, 这在其他研究中也有报道^[4]。文献^[10, 13, 17-19]指出, 同一种测试方法下钨材料的 DBTT 具有明显的速率依赖性。如表 1 所示, 本研究中的 3 种测试方法的试样形状和大小不同, 加载速率也不同, 测得的 DBTT 差别很大, 这与加载速率有依赖性, 对此做了 2 组更高加载速率的 4PBTT 进行验证。

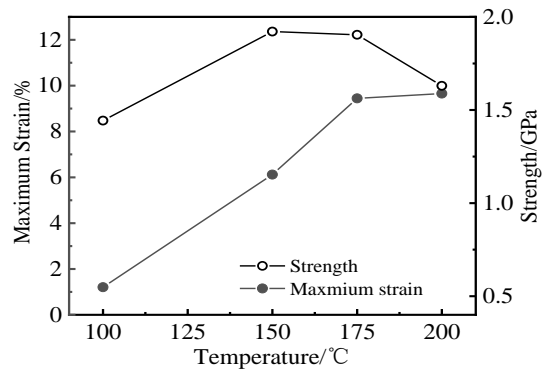


图 5 4PBTT 的最大应变率和强度

Fig.5 Maximum strain and strength of 4PBTT

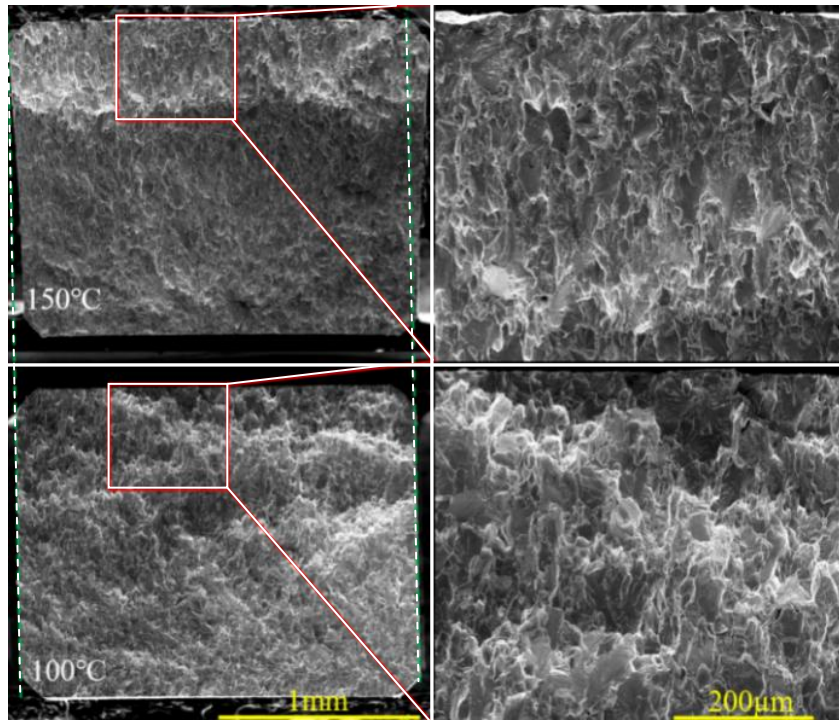


图 6 100 和 150 °C 四点弯曲样品断面 SEM 照片

Fig.6 SEM images of fracture surface for 4PBTT samples at 100 and 150 °C

表 2 文献中报道的纯钨 DBTT 及对应测试方法和参数

Table 2 DBTT and corresponding test methods and parameters reported in the literature

Reference	Material	Test Method	Atmosphere	Loading rate	DBTT/°C
Z. S. Levin and K. T. Hartwig ^[2]	Tungsten rods	Three-point bend test	Ar	0.01 mm/s	175~250
M. Rieth and A. Hoffmann ^[12]	Tungsten rods	Charpy impact (un-notched)	Vacuum (about 0.1 Pa)	—	450
C. Bonnekoh et al ^[13]	Hot-rolled plates	Fracture mechanical testing	Vacuum	100 MPa m ^{0.5} /s	200
J. Reiser et al ^[15]	Hot-rolled plates	Charpy impact	Vacuum (about 0.1 Pa)	3.85 m/s	375
H. W. Deng et al ^[16]	Hot-rolled plates	Tensile test	—	0.06 mm/min	~200

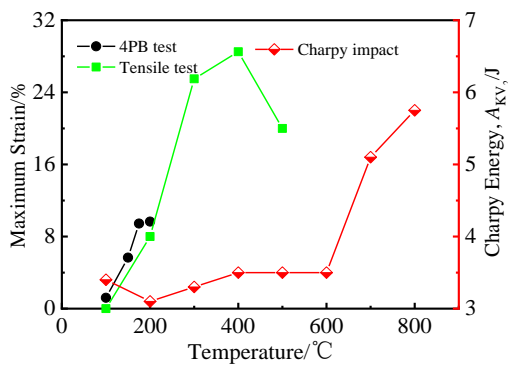


图 7 3 种测试方法结果

Fig.7 Results of three test methods

2.3 DBTT 与加载(应变)速率的关系

2 组更高加载速率的 4PBT 的加载速率分别设定为 4.5 和 50 mm/min, 其中 4.5 mm/min 测试组与拉伸试验具有相同应变速率, 50 mm/min 测试组作为对照。表 3 列出各组测试的应变速率和 DBTT 数据, 其中 4PBT 和拉伸试验的应变速率都根据标准中的公式计算。冲击试验的外部纤维应变速率用欧拉-伯努利梁理论推导得到^[15]。

图 8 为 3 种加载速率 4PBT 和拉伸试验的最大应变和强度结果。其中 4PBT 的最大应变由于受到试验夹具的限制远低于拉伸试验。而 4PBT 强度为抗弯曲强度, 拉伸试验强度为抗拉伸强度, 对于相对脆的材料, 抗弯强度一般大于抗拉强度。由图 8 可以看到, 4.5 mm/min 的 4PBT 的最大应变和强度的变化趋势以及 DBTT 与 1.5 mm/min 的拉伸试验最为接近。这 2 组测试的应变速率分别为 0.101 min⁻¹ 和 0.100 min⁻¹, 也是最为接近。因此, 在相似的试验条件下, 当 4PBT 和拉伸试验具有相同的应变速率时, 2 种方法得到的 DBTT 具有可比性。冲击试验的加载(应变)速率太大, 不宜与低速率的弯曲和拉伸试验进行对比。

表 3 各测试组应变速率和 DBTT

Table 3 Strain rate and DBTT of each test group

Test speed	Strain rate/min ⁻¹	DBTT
4PBT, 0.2 mm/min	0.004	137.5 °C (410.65 K)
4PBT, 4.5 mm/min	0.101	187.5 °C (460.65 K)
4PBT, 50 mm/min	1.112	225 °C (498.15 K)
Tensile test, 1.5 mm/min	0.100	200 °C (473.15 K)
Charpy impact, 5 m/s	16 875	Above 700 °C (973.15 K)

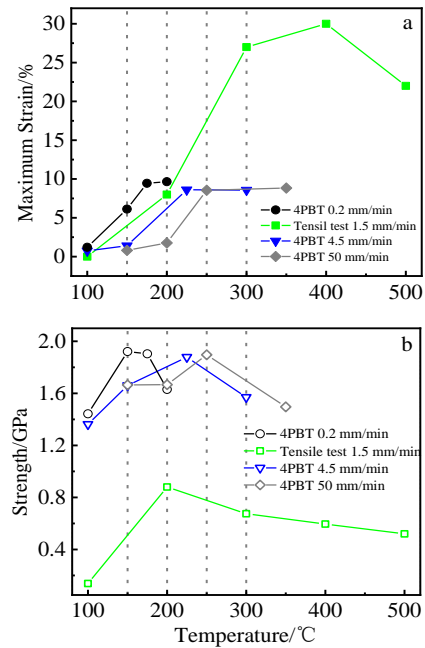


图 8 不同速率下 4PBT 和拉伸试验的最大应变和强度

Fig.8 Maximum strain (a) and strength (b) of 4PBT and tensile test at different speeds

2.4 测试方法对 DBTT 测量的影响

文献指出纯钨韧脆转变是由螺位错的滑移和扭结对的形核控制^[13]。而钨的 DBTT 受到许多物理因素、冶金因素和试验因素的影响，例如纯度，位错密度，晶粒尺寸，微裂纹，应变速率，样品形状等。本研究中 3 种测试方法样品所用的材料是来自同一批商用轧制纯钨，可以假设 3 种测试方法样品的冶金和加工因素相同。对于不同形状和尺寸的样品，韧脆转变的过程都由螺位错的迁移和扭结对的形核控制。当测试温度升高时，样品中的位错活性也会增强，样品宏观的脆性和韧性由螺位错的迁移能否响应测试时的应变速率来决定。对于一种测试方法 DBTT 具有应变速率决定性，应变速率与 DBTT 间的关系满足阿雷尼乌斯方程^[13]。

$$d\epsilon/dt = A \exp\left(-\frac{E_{DBTT}}{k_B T_{DBTT}}\right) \quad (3)$$

其中， $d\epsilon/dt$ 是测试过程中的应变速率， T_{DBTT} 为该应变速率对应的韧脆转变温度， E_{DBTT} 为韧脆转变活化能， k_B 是玻尔兹曼常数， A 为指前因子。

图 9 给出了用不同加载速率 4PBT 的结果拟合得到的直线和韧脆转变活化能 (E_{DBTT}) 以及拉伸试验和冲击试验结果。从图 9 中可以看到，拉伸试验和冲击试验结果与拟合直线都有一定偏差。商业轧制纯钨的韧脆转变激活能为 (1.13 ± 0.06) eV。

文献中报道：相同测试方法中当应变速率高 1 个数量级时，DBTT 也会升高约 50 °C^[18]。这和本研究中 4PBT 的结果非常吻合。但是相同应变速率下拉伸试验的 DBTT 比 4PBT 略高，这可能是因为定义方法使测得的 DBTT 发生了偏差。4PBT 由于夹具的限制最大应变率不能超过 10%，而拉伸试验只要样品不断，应变率就会不断增加。200 °C 时拉伸试验的最大应变率为 8%，这比本研究给出的 4PBT 韧脆转变温度点应变率要高。所以不同测试方法间 DBTT 的对比不仅需要考虑应变速率的差异，还需要综合考虑样品形状对其最大应变率的限制和 DBTT 定义方法的不同。

本工作中冲击试验的加载速率比其他 2 种测试方法要高了几个数量级，得到的 DBTT 高了 500 °C 以上。这比文献中报道的相同加载方向和加载速率量级的真空中落锤冲击试验得到的轧制纯钨 DBTT 约 500 °C^[3]也要高得多，造成这种现象的原因可能是因为本研究的冲击试验在空气中进行。暴露于空气中加热无疑会使钨氧化变脆。除此之外，文献中还报道样品开槽会使其 DBTT 升高^[3, 20]，这也是冲击试验得到的 DBTT 偏高的原因之一。

基于以上实验结果和讨论，作者认为：对于钨材料的 DBTT 的测量，应该选择合适的试验方法，该方法的

测试环境尤其是加载(应变)速率范围应该与材料的实际使用工况相似。例如，针对作为聚变堆面向等离子体材料的钨材料，其使用过程中都处于真空环境，所以测试环境应该是真空或气氛保护；而穿管钨块在聚变堆中主要受到热应力作用，并且该热应力在时间和空间上是不均匀的，因此其 DBTT 测试方法和试验条件选择需要考虑相应的实际工况，这样得到的数据才更有意义。

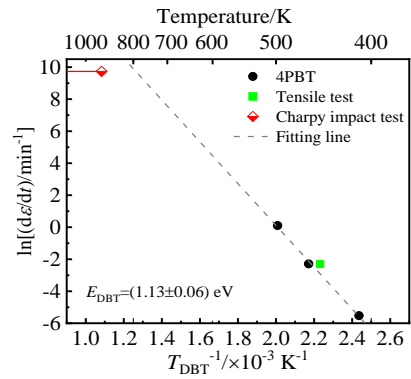


图 9 不同加载速率下四点弯曲的结果进行拟合得到的拟合直线和韧脆转变激活能(E_{DBTT})以及拉伸试验和冲击试验结果

Fig.9 Fitting line and the ductile and brittle transition activation energy (E_{DBTT}) obtained by 4PBT at different loading rates, and the results of tensile test and impact test

3 结 论

1) 同一批商业轧制纯钨，四点弯曲标准试验获得的 DBTT 为 137.5 °C，拉伸试验 DBTT 为 200 °C，而冲击试验得到的 DBTT 高于 700 °C。可以看出，不同测试方法得到的 DBTT 的差值达到 500 °C 以上。

2) 分析认为不同测试方法影响 DBTT 的实验因素主要是加载(应变)速率，通过对比不同加载速率四点弯曲实验和拉伸试验结果，证实不同测试方法测得的 DBTT 具有速率依赖性。

3) 借助阿伦尼乌斯方程并利用不同速率 4PBT 结果拟合得到商业轧制纯钨的韧脆转变激活能为 (1.13 ± 0.06) eV，为预测不同测试方法以及同种方法不同应变速率条件下的 DBTT 测量值奠定了基础。

参考文献 References

[1] Linke Jochen, Du Juan, Loewenhoff Thorsten *et al. Matter and Radiation at Extremes*[J], 2019, 4(5): 056 201
 [2] Levin Z S, Hartwig K T. *Materials Science and Engineering A*[J], 2017, 707: 602
 [3] Nogami Shuhei, Watanabe Shotaro, Reiser Jens *et al. Fusion*

- Engineering and Design*[J], 2018, 135: 196
- [4] Ren Chai, Fang Z Zak, Koopman Mark *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2018, 75: 170
- [5] Nogami Shuhei, Watanabe Shotaro, Reiser Jens *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2019, 140: 48
- [6] Qi Yanfei(齐艳飞), Wang Bo(王波), Zhou Jingyi(周景一) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2018, 47(6): 1945
- [7] Panayotis S, Hirai T, Barabash V *et al. Fusion Engineering and Design*[J], 2017, 125: 256
- [8] Sun Zhaoxuan, Li Qiang, Wang Wanjing *et al. Nuclear Fusion and Plasma Physics*[J], 2017, 37(4): 446
- [9] Loewenhoff T, Linke J, Pintsuk G *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 463: 202
- [10] Németh André A N, Reiser Jens, Armstrong David E J *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2015, 50: 9
- [11] Shah V, Van Dommelen J A W, Altstadt E *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2020, 541: 152 416
- [12] Rieth M, Hoffmann A. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2010, 28(6): 679
- [13] Bonnekoh Carsten, Reiser Jens, Hartmaier Alexander *et al. Journal of Materials Science*[J], 2020, 55: 12 314
- [14] USA Standard. ASTM C1161-13[S]. 2001
- [15] Reiser Jens, Hoffmann Jan, Jäntsch Ute *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2016, 54: 351
- [16] Deng H W, Xie Z M, Wang Y K *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2018, 715: 117
- [17] Vrieling M A Oude, Van Dommelen J A W, Geers M G D. *Mechanics of Materials*[J], 2020, 145: 103 394
- [18] Giannattasio A, Roberts S G. *Philosophical Magazine*[J], 2007, 87(17): 2589
- [19] Tarleton E, Roberts S G. *Philosophical Magazine*[J], 2009, 89(31): 2759
- [20] Reiser J, Rieth M, Dafferner B *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 442(1-3): S204

Measurement of Ductile-Brittle Transition Temperature of Tungsten Materials by Four-Point Bending Method and Its Comparison with Other Methods

Geng Xiang^{1,2}, Luo Guangnan², Wang Wanjing², Li Qiang², Wang Jichao², Xie Chunyi², Huang Lingming²,
Chen Zhen², Peng Wuqingliang²

(1. Institute of Physical Science and Information Technology, Anhui University, Hefei 230039, China)

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

Abstract: For performance evaluation of tungsten materials in fusion device, four-point bending test (4PBT) was carried out to analyze the ductile-brittle transition temperature (DBTT) of tungsten material. DBTT of industrial rolling pure tungsten measured by standard four-point bending method is under 150 °C, basing on analysis to the change of strain rate and strength with temperature. This result is lower than the measured values of the tensile test and impact test. Then the results of 4PBT with different loading rates and tensile test were compared to confirm the loading rate dependence of DBTTs obtained by different test methods. Finally, the reasons for the influence of test methods on DBTT measurement were analyzed and discussed.

Key words: tungsten material; ductile-brittle transition temperature (DBTT); four point bending test (4PBT); loading rate

Corresponding author: Wang Wanjing, Ph. D., Associate Researcher, Fusion Reactor Materials and Components Laboratory, Institute of Plasma Physics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, P. R. China, Tel: 0086-551-65591507, E-mail: wjwang@ipp.ac.cn