

基于同步辐射和中子衍射分析的金属增材制造关键 共性问题研究进展

张楠^{1,3}, 王焱辉¹, 张书彦², 葛学元¹, 张平¹, 李静¹, 张志豪³

(1. 北京机科国创轻量化科学研究院有限公司, 北京 100083)

(2. 东莞材料基因高等理工研究院, 广东 东莞 523808)

(3. 北京科技大学, 北京 100083)

摘要: 金属增材制造技术具有“微区超常冶金”和“激冷快速凝固”的本征属性。实现动态监测和控制增材制造过程中缺陷、应力和组织的演化, 是该领域国际前沿研究的难点和热点。本文从航空、航天及汽车等领域中金属增材制造的关键共性问题入手, 阐述了同步辐射和中子衍射 2 种方法在金属增材制造中的冶金动力学及内部缺陷原位分析, 液态金属超常凝固, 微观组织及相变过程, 内应力的形成及演化行为的研究进展。最后, 阐述了研究不足, 并展望了金属增材制造的未来发展。

关键词: 增材制造; 同步辐射; 中子衍射

中图分类号: TB31

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2022)07-2698-11

航空、航天和汽车制造等现代化高端制造装备正向着差异化、集成化、极端工况下可靠化、使役行为耐久化方向发展, 致使钛合金、铝合金、镍基高温合金及特殊用钢等关键金属构件的制造向着大型化和个性化方向迈进^[1]。金属构件增材制造技术 (additive manufacturing, AM) 是以金属粉末或丝材为原料, 通过高功率热源原位冶金熔化, 快速凝固逐层堆积, 直接从零件数模一步完成理论致密、高性能的复杂构件的直接近净成形制造技术, 被誉为是“革命性”的短周期、低成本、高性能的绿色制造技术^[2]。

金属结构件的增材制造通过高能密度热源逐点扫描、逐线搭接, 逐层熔化, 层层堆拓的形式, 实现三维复杂零件的近净成形^[3], 本质上是反应了金属超常冶金、快速凝固与结构逐层堆拓的一体化过程。该过程的材料非平衡物理冶金和热物理过程复杂, 同时发生着热源与增材金属 (粉末、丝材和基材) 之间的交互作用、动态熔池的非常态冶金、熔池极高温梯度及强约束下的快速凝固及逐层沉积三维构件内部材料组织演化、复杂约束条件下热应力演化等。鉴于以上金属增材制造技术特征的内禀属性, 目前尚存在如下 3 大关键共性问题亟待突破: (1) 在大型整体合金构件长期循环往复加热熔化逐点逐层局部沉积成形过程中, 可能在零件内

部产生各种内部冶金缺陷, 如未熔合、气隙、卷入性或析出性气孔、夹杂及裂纹等, 影响成形件的力学性能和使役安全; (2) 零部件在增材制造过程中经历的长期周期性极限加热与冷却, 熔池在强约束作用下收缩及伴生的短时非平衡循环固态相变, 易在零件内部产生很大且极为复杂的热应力、组织应力和机械约束应力, 以及强烈非稳态交互作用和应力集中, 导致零件严重变形甚至开裂; (3) 在极高的温度梯度下非平衡凝固形核和长大过程, 快速成形过程的高度敏感性及多变性直接影响材料晶粒形态、尺寸、晶体取向、晶界结构、化学成分均匀性, 给成形件内部组织和性能一致性控制带来了巨大困难。

同步辐射光源作为一种大科学装置, 具有频谱宽、高通量、低发散度等优点, 其光源亮度是保障测试材料内部微观结构高分辨分析的重要指标。与常规 X 射线相比, 同步辐射光源亮度高出 4~12 个数量级^[4], 可原位、高效、高分辨表征瞬态激光诱导现象, 包括熔池缺陷形成动力学^[5-7]、微观结构^[8]和相转变^[9-11]等。借助高通量、高能量的第 3 代^[12]和第 4 代同步辐射源 (部分光源参数见表 1), 能够实现快速 (毫秒到微秒) X 射线成像和激光-物质相互作用的衍射, 已为金属增材制造技术的原创性科学探索提供了重要的支撑平

收稿日期: 2021-07-18

基金项目: 国家自然科学基金 (51975240); 广东省基础与应用基础研究重大项目 (2020B0301030001)

作者简介: 张楠, 男, 1983 年生, 博士, 高级工程师, 北京机科国创轻量化科学研究院有限公司, 北京 100083, 电话: 010-60603546, E-mail: zhangnan@camtc.com.cn

台。目前采用同步辐射原位研究较为深入的机构有：第 1 个是美国阿贡实验室使用的第 3 代 APS 光源 (Zhao 等人)^[10,13,14]；第 2 个是英国的第 3 代 Diamond 光源 (Leung 等人)^[7,15]；第 3 个是美国斯坦福的第 2 代 SSRL 光源 (Calta 等人)^[11,16]。

中子衍射则是利用高通量中子束作为物质结构探针^[17]，激发态中子在环状中子导管内加速，经准直器射向样品后发生散射，谱仪接收散射信号并分析样品内部组分、结构和动力学等相关信息的一种技术手段。目前，世界上主要的中子散射公用平台如图 1 (引自中国物理学会中子散射专业委员会主页 <http://www.ihep.cas.cn/xh/cnss/>) 所示，黄色表示反应堆中子源，红色表示散裂中子源。由于反应堆散热技术的限制，对于精细样品快速、高分辨的中子测量迫切需要新一代大能量、高通量、宽波段的中子源，因此，世界四大散裂中子源应运而生，相关设计参数见表 2。可见，中国散裂中子源 CSNS 的工程材料谱仪

EMD 具有测量范围广，样品处通量高的特点^[18]，在应力^[19]、应变^[20]、织构^[21]、相变^[22]和布拉格截断透射成像^[23]等测试中，有望实现金属复杂构件增材制造过程对应力、变形、相转变等瞬态信息的快速在线获取与演变分析，是另一个揭示增材制造技术领域关键科学问题的大科学装置。

本文根据所述关键共性问题，从金属增材制造熔池冶金行为及缺陷形成机制、增材制造内应力的形成和演化规律及控制，以及超常凝固及固态相变行为与组织分析这 3 方面入手，讨论同步辐射和中子衍射分析在金属增材制造关键共性技术方面的研究进展，并在此基础上，对未来的重点学术与技术研究问题进行了展望。

1 AM 金属熔池冶金行为及缺陷形成机制

由于传统的二维表征手段 (如切片观察等) 一方面无法得到 AM 缺陷的空间形貌，另一方面更难以实

表 1 世界 (部分) 同步辐射光源主要参数

Table 1 Main parameters of synchrotron radiation light source in the world (part of)^[24]

Synchrotron radiation light source	Country/generation	Year	Electron energy/ GeV	Electron emission/ m rad	BPM resolution/ μm	Ray focus size/ nm
ESRF	France/3rd	1993	6	3.8×10^{-9}	~1	<100
APS	USA/3rd	1995	7	3×10^{-9}	~1	<100
SPring-8	Japan/3rd	1997	8	2.8×10^{-9}	~1	<100
Diamond	UK/3rd	2007	3	2.8×10^{-9}	~1	<100
SSRF	China/3rd	2009	3.5	4×10^{-9}	~1	<100
TPS	China/3rd	2015	3	1.8×10^{-9}	~0.3	<10
MAX IV	Sweden/4th	2016	3	1.2×10^{-10}	~0.1	<10
HEPS	China/4th	Building	5	$\leq 1 \times 10^{-10}$	~0.1	<10



图 1 全球主要中子源的分布图

Fig.1 Distribution map of major neutron sources in the world

表 2 四大材料工程衍射谱仪（部分）设计参数

Table 2 Design parameters of four materials engineering diffraction spectrometers (part of)

Spectrometer	Wavelength/nm	Spectrometer resolution/%	Sample processing throughput/n cm ⁻² s ⁻¹
SNS VULCAN ^[25]	0.144 at 60 Hz	0.25 at high resolution mode	3.0×10 ⁷ at high resolution mode/2 MW
	0.288 at 30 Hz	0.45 at high intensity mode	1.2×10 ⁸ at high intensity mode/2 MW
	0.432 at 20 Hz		
ISIS ENGIN-X ^[26]	0.154 at 50 Hz	0.30	3.0×10 ⁶ /160 kW
	0.307 at 25 Hz		
	0.460 at 16.7 Hz		
	0.615 at 12.5 Hz		
J-PARC TAKUMI ^[27]	0.377 at 25 Hz	0.17 at high resolution mode	2.2×10 ⁷ at high resolution mode/1 MW
	0.754 at 12.5 Hz	0.40 at high intensity mode	4.8×10 ⁸ at high intensity mode/1 MW
CSNS EMD	0.207 at 25 Hz	0.25 at high resolution mode	5.4×10 ⁶ at high resolution mode/100 kW
	0.754 at 12.5 Hz	0.50 at high intensity mode	1.7×10 ⁷ at high intensity mode/100 kW

现熔池、粉末飞溅以及缺陷演化的实时表征。欲实现 AM 金属构件冶金缺陷的主动控制，众多学者针对钛合金、镍基合金、铝合金等不同金属材料，围绕热传输、溶体流动、材料熔化和溶体固/液界面移动等多种因素的相互作用机制，采用高精度、高亮度、高准直、非破坏性的同步辐射 X 射线成像（SR- μ CT）技术，深入到金属材料内部，进行可视化表征孔洞、裂纹等缺陷的三维尺寸信息，实现了原位、在线、实时的 AM 熔池动力学行为以及缺陷演化行为的研究。

气孔和飞溅是 AM 过程中普遍存在的问题。SR- μ CT 技术可实现微秒级别的时间分辨率，在孔隙和飞溅运动的时间分辨定量方面提供了速度和方向的关键信息，这是用其他技术无法获得的，因此成为研究 AM 过程中熔池、粉末和孔洞的形成演化规律的主要手段之一。2017 年，美国 Zhao 等人^[10]率先研究了粉末与激光的相互作用以及缺陷的形成规律，包括熔池形貌的变化规律、粉末飞溅运动规律、凝固速率的测量以及无扩散的 hcp 到 bcc 固态相变等内容。2018 年，Calta 等人^[11]采用原位同步辐射衍射和成像技术，首先实现了 AM 过程中的原位观察，包括熔池形貌、孔洞以及固态相变等。同样，Leung 等人^[15]研究了 316L 不锈钢在 AM 过程中粉末飞溅的动力学行为，发现粉末的飞溅与金属蒸气的喷射和保护气的流动相关，并观察了固定激光能量密度条件下的熔池变化，发现熔池变化不但与熔池能量耗散率相关，还取决于熔池的能量吸收率。Leung 等人^[7]在 Nature Communications 期刊公开报道了利用 SR- μ CT 技术研究 Ni-Fe 合金 AM 过程中的熔池动力学行为，揭示和阐明了熔体轨迹、剥蚀带、飞溅和孔洞（pore）形成的机理，包括孔隙迁移、溶解、分散和破裂。结果显示，热粉末颗粒从

挥发性熔体池喷射到空腔，改变激光功率和扫描速度，飞溅频率增加，但随着扫描速度的提高，熔池的稳定性足以抵抗飞溅。一部分飞溅粉末，在压力梯度的作用下直接落入熔池，另一部分粉末在落入熔池前，在激光的加热下相互接触熔融，实现沉积。美国 Cunningham 等人^[14]同样采用 SR- μ CT 技术研究了 Ti-6Al-4V 合金铺粉增材制造过程的匙孔的形成机理。研究表明，匙孔的形成存在一个明显的阈值，随后通过定义一个角度，建立匙孔与工艺参数的数值模型，并结合模拟结果，实现了匙孔的准确预测和控制。而 Martin 等人^[16]采用 SR- μ CT 技术观察 Ti6Al4V 增材制造过程中在激光转折点的孔洞（pore）形成机制。结果发现研究中观察到的所有孔洞都是在激光通过转折中点后形成的，并且几乎所有孔洞都是在该中点后 200~1000 μ s 形成的，与扫描速度和功率无关。进一步通过原位观察转折点区域的熔池形貌，发现随着功率的增加，转折点匙孔深度逐渐增大。在转动过程中随着光路的减速和加速导致匙孔凹陷，熔化的金属填充凹坑，同时捕获气体氩，最终在凹坑凝固时形成孔。

通过同步辐射 X 射线成像，还能检测到一些常规缺陷检测无法观察到的缺陷。例如，Xavier 等人^[28]利用多束同步辐射 X 射线的 DCM（data-constrained modelling）研究了 LMD 沉积 316L 不锈钢样品内部缺陷分布，相对于传统的截面分析技术，DCM 在统计内部缺陷水平上更加有效，发现样品中的存在大量小的轻组分（包括孔）占主导地位，而在使用常规阈值方法进行的文献报道的大多数研究中均无法检测到这些缺陷。Calta 等人^[11]设计了一种实验室 LPBF 测试平台（图 2），成为同步加速器 X 射线源进行衍射和成像实验，并以 Ti-6Al-4V 作为模型系统进行了验证，发现：

熔池动态图像以高达 4 kHz 的帧频成像，有效像素尺寸约为 1.1 μm ，揭示了由于蒸气反冲力而形成的锁孔；以 1 kHz 采样率进行衍射实验，通过衍射峰形状和位置变化，在约 50 μm × 100 μm 区域内观察到快速冷却期间的相转变和晶格收缩。进一步，利用其所研制的平台，Calta 等人^[29]还研究了 S316L、Ti64、Al6061、Ni400 等 4 种合金在激光通融过程中的熔池流动行为，发现成分及温度改变了液态金属表面张力，影响了增材制造零件的缺陷形成。

熔池的形貌和尺寸在激光增材制造成型过程中起关键作用，与激光增材制造工艺参数密切相关。清华大学 Zhou 等人^[30]利用 SR- μCT 研究了 Co-Cr-Mo 合金 SLM 零件中的剩余孔隙率与激光加工参数的关系，并重构了内部缺陷的准确 3D 影像，研究发现：先沉积的粗糙平面会对后面的熔池产生扰动，通过调整工艺参数稳定熔池流量并降低表面粗糙度可能降低缺陷浓度。美国卡耐基梅隆大学的 Cunningham 等人^[31,32]采用 SR- μCT 技术研究了制备工艺对增材制造 Ti-6Al-4V 孔洞的影响，发现工艺参数与孔洞形成激励之间存在明确的联系，熔池重叠不足会导致熔合孔，而且功率密度过高则会产生匙孔。在进一步研究发现，初始粉

末样品的气孔与制备态样品气孔密切相关，制备态样品在热等静压 (HIP) 过程中孔洞尺寸减小，但在随后热处理过程中孔洞又增大，如图 3。Sangid 等人^[33]通过 SR- μCT 技术探测了 SLM NI718 热处理和沉积过程中样品内空隙的大小，其中，在零件自由表面发现大量空隙，经热处理（无需进行热等静压）可显著减少材料中孔隙率。Guo 等人^[34]利用 SR- μCT 直接观测了在固定的激光能量密度下激光粉末床熔池形貌的变化，发现熔池尺寸和体积在固定激光能量密度下可以有数量级的变化，见图 4，认为熔池形貌的变化不能仅根据能量耗散速率而定，能量吸收也是另一个重要影响因素，而这与激光功率和扫描在熔池发展过程中独立的作用相关，相关研究为进一步认识激光粉末床增材制造和调节工艺参数提供了依据。

AM 过程中因缺陷诱导的裂纹及其对疲劳损伤的影响，是 AM 构件服役行为研究中的热点和前沿课题。吴正凯等人^[35]通过同步辐射成像对选区激光熔化 (SLM) 成形的 Ti-6Al-4V 合金缺陷和疲劳行为进行了研究，发现疲劳裂纹多萌生于试样表面和近表面较大缺陷，呈现典型的半椭圆形裂纹，且未熔合型缺陷对疲劳寿命的影响相对更大，同时，同步辐射成像所

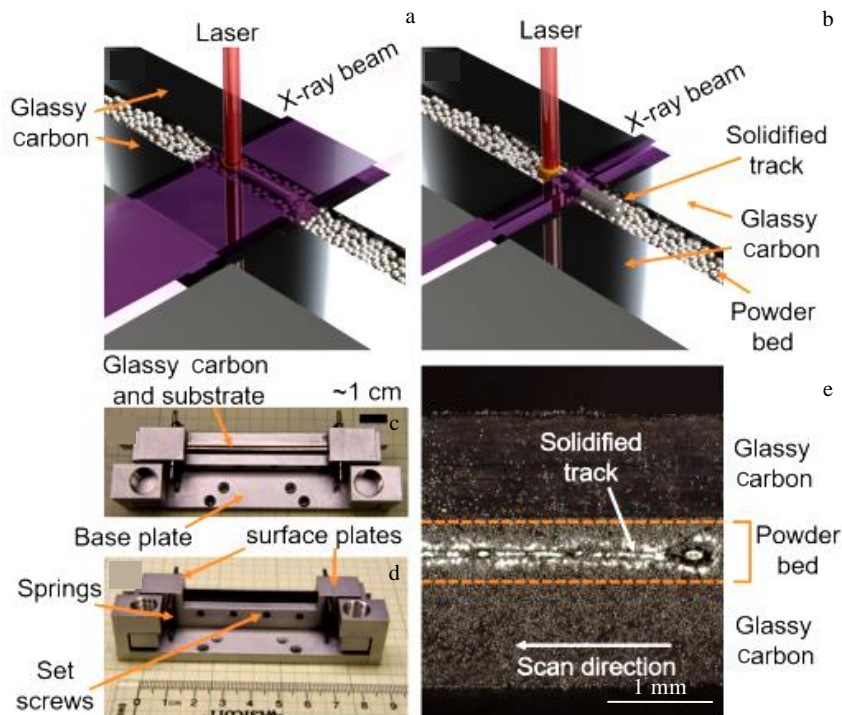


图 2 同步辐射 LPBF 样品台

Fig.2 Sample holders of synchrotron radiation LPBF: (a) CAD rendering of the sample holder geometry in imaging mode; (b) similar CAD rendering of the sample holder in diffraction mode; (c, d) photographs of the sample holder with glassy carbon windows and a substrate; (e) ex situ image of a typical single weld track in the sample holder^[11]

获得的疲劳裂纹尺寸与断口实际测得疲劳裂纹扩展区基本一致，表明同步辐射在疲劳裂纹萌生与观测上具有分析可行性。美国 Sandgren 等人^[36]利用高能同步辐射成像研究了 LENS 成形 Ti-6Al-4V 试样的疲劳裂纹生长，发现裂纹扩展沿拉伸轴存在一些面外偏转，通过 2D、3D 重构并结合 SEM 断裂断口分析，与传统测试方法对比吻合较好。

2 AM 构件内应力的形成和演化规律

在 AM 过程中，材料经历了高能量密度热源周期性、非稳态、极限速率加热和冷却、短时非平衡循环

固态相变，以及强约束下移动熔池的快速凝固与收缩等超常冶金，容易在零件内产生热应力、相变应力、约束应力及其非线性强耦合交互作用和应力集中，导致零件翘曲变形和开裂。内应力控制及变形开裂成为长期制约金属 AM 技术发展和应用的瓶颈问题，主要反映在以下 2 个方面。

2.1 利用中子衍射原位测量材料内应力的准确性

传统残余应力表征手段，如盲孔、环芯等有损检测方法，多用于工程测量领域。而 X 射线衍射法 (XRD) 虽然测量精度高，但由于穿透深度在微米量级 (见图 5)，不能有效表征 AM 样品内部的应力状态。而中子

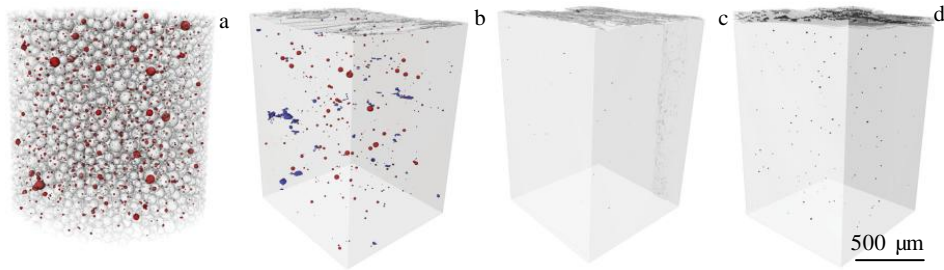


图 3 Ti-6Al-4V 孔隙率变化

Fig.3 Porosity changes of Ti-6Al-4V: (a) powder, (b) as-deposited, (c) HTPed, and (d) solid solution state^[32]

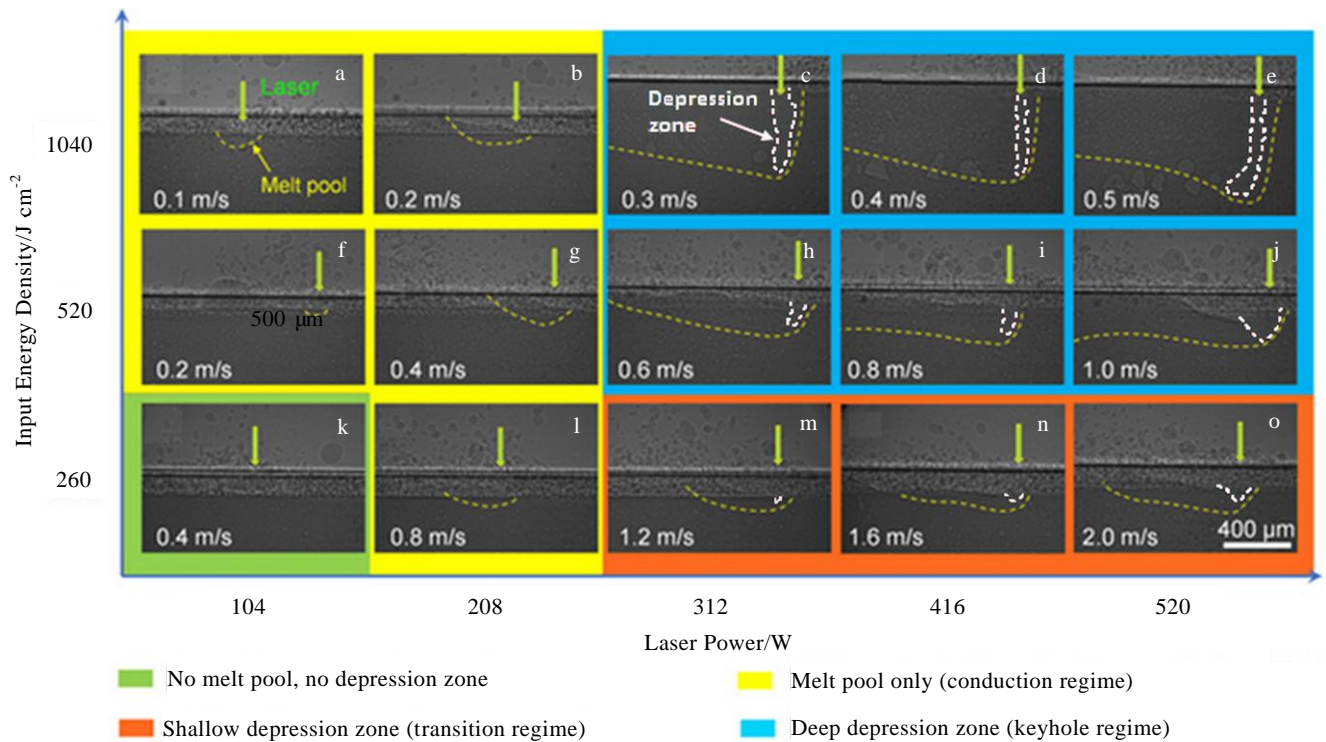


图 4 固定能量输入下熔池形貌变化

Fig.4 Change of molten pool morphology under fixed energy input^[34]

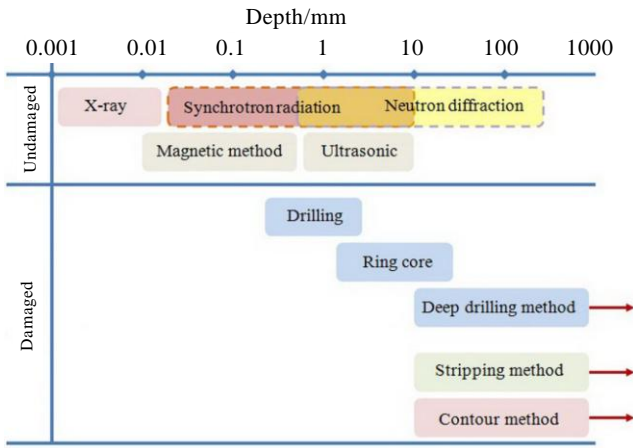


图 5 不同应力测试方法的测试深度比较

Fig.5 Comparison of test depth of different stress test methods^[37]

具有毫米量级的穿透能力，有利于测量材料或工程部件深部的应力信息，在研究和描述材料内应力方面具有巨大潜力。

散裂中子最早在材料焊接应力工程上的首次应用可以追溯到 2005 年，英国 EDF 能源公司与公开大学 Bouchard 等人^[38]合作，利用英国散裂中子源 ISIS 上的

中子衍射工程谱仪 ENGIN-X，对大型焊接修复核电构件中存在的残余应力进行了大量的测量分析工作。图 6 所示为典型应用实例—核电蒸汽头对接管的焊接修复。通过测量发现前期焊接应力模拟不准确，对于安全性的评估不够保守。接着又展开了一系列围绕焊件的有损测量，如图 7 中所示的轮廓法，两者校验得到中子衍射测量残余应力的不确定度达到 ± 30 MPa 以内，有力地验证了中子衍射测试焊接残余应力的准确性，为英国核电站延长寿命已达 8 年。除此以外，Ramjaun 等人^[40]利用中子衍射法量化了高强度钢焊接过程中残余应力的分布，并研究了与层间温度的关系，认为层间温度升高将会减少或消除前序焊道形成的有益压应力状态，焊接热影响区以及位于焊趾下方的区域存在着残余拉应力(如图 8)，这与 Thibault 等人^[41-43]研究发现相符。

2.2 复杂热历史作用下结构应力的演化

因零件反复加热、冷却和再加热，约束状态下所形成的热应力是导致 AM 零件产生残余应力的重要原因之一。Cottam 等人^[44]采用中子衍射技术研究了同轴送粉激光增材 H13 的室温组织和残余应力分布，揭示了打印冷却和道次间热循环期间固态相变过程及其引起残余应力机理，并将马氏体相变对残余应力的影响

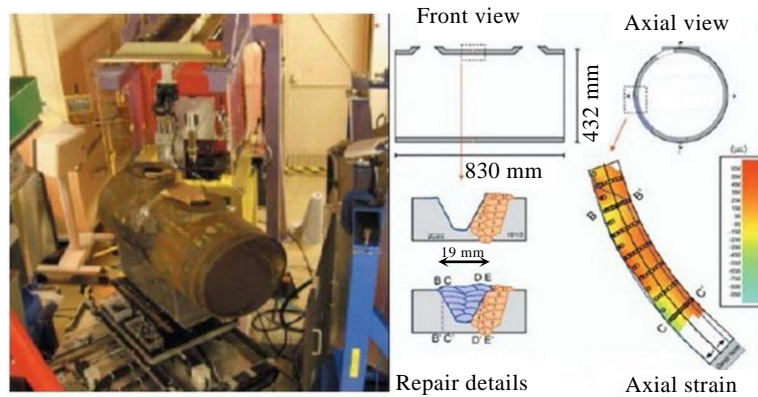


图 6 焊接修复后的应变分布图

Fig.6 Strain distribution diagram after welding repair^[38]

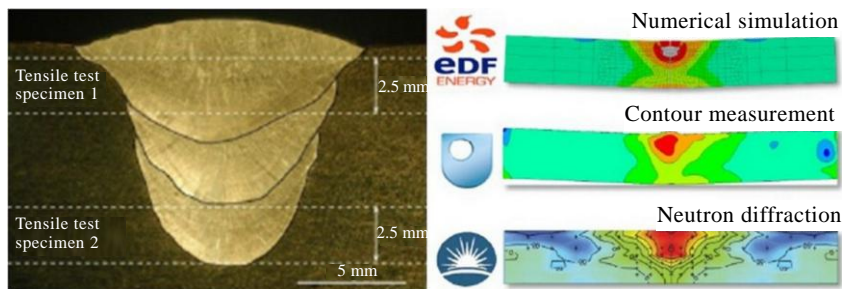


图 7 SA508 焊接修复应力多方法评估

Fig.7 Multi-method evaluation of stress in welding repair of SA508^[39]

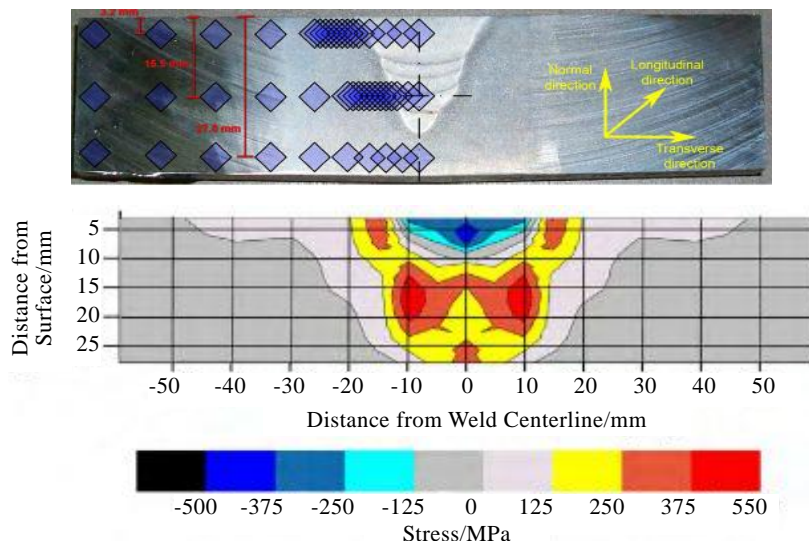


图 8 中子衍射法实测接头纵向应力

Fig.8 Longitudinal stress of joints with neutron diffraction method^[40]

引入计算模型, 进一步提高了 AM 应力分布预测的准确性。Masoomi 等人^[45]采用中子衍射方法检测激光铺粉增材制造 17-4PH 构件不同位置内部残余应力, 并通过在线中子衍射技术研究了增材过程及热处理对残余应力演变影响, 明确了打印组织特征与打印方向及后处理之间的关系。为了验证快速反复熔凝过程引起的应力松弛现象, Wang 等人^[46,47]通过原位中子衍射技术对比分析了 AM 试样和传统加工试样在高温应力松弛试验中的应力变化, 研究表明: AM 试样具有更高的应力松弛速率和较小的峰值应力。

制造过程中材料在复杂热历史条件下所产生的相变应力是形成 AM 零件残余应力的另一重要原因。Martina 等人^[48]同样采用中子衍射技术研究了采用同轴送粉激光增材制造 (LAM) 和送丝电弧增材制造技术 (WAAM) 制备 Ti-6Al-4V 钛合金板材的显微组织和残余应力/应变分布特征, 发现钛合金试样板中最高残余应力均值分布于沉积方向且在基材连接处最大, 且材料在 AM 过程中不可避免地产生马氏体膨胀相变, 使得构件的整体残余应力信息发生改变, 这一研究为 AM 结构的优化设计提供了参考。Chen 等人^[49]在原位观察残余应力在热处理过程中的演化时发现, 随着温度上升, 反映结构内部应力信息的材料晶面间距逐渐增大; 随着温度下降, 晶面间距逐渐减小, 但与热处理之前有显著区别。同样, Dye^[50]等人采用中子衍射技术原位跟踪了 AM 过程中材料相变的衍射峰变化, 研究揭示了熔池凝固相变过程中应力的演化行为, 在熔池和热影响区内, 熔池前方表现为压应力, 后方为拉应力, 远端为压应力。

3 超常凝固及固态相变行为与组织分析

金属材料 AM 过程实际上经历了多次“逐点扫描-逐线搭接-逐层堆积”的循环往复过程, 伴随材料的合金化程度高、显微组织和力学性能表现出对固态相变的极端多变性和复杂性, 因此, 对合金材料固态相变的准确控制已成为挖掘金属材料性能潜力的重要手段之一。同步辐射高能 X 射线衍射技术, 由于高的时间分辨率, 在原位表征 AM 相变行为方面具有明显优势, 被证明可以成功地揭示瞬态熔池背后不可见的瞬时机理。

瑞士 Kenel 等人^[51,52]通过同步辐射微 X 射线衍射技术研究了 Ti-48Al 合金及 Al-Cu-Mg 合金在微光快速加热和冷却过程中的相变行为, 实现了快速冷却过程中的相变表征。Mu 等人^[53]利用原位 HE-XRD 实验研究压缩加载模式下样品的结构演化和晶格应变变化, 证实了在宏观应力-应变曲线的线性弹性阶段, 材料变形诱发了马氏体从 β 到 α'' 的二级相变, 获得晶态增强相在变形过程中的微观应力, 揭示了马氏体相变主导的晶态增强相与非晶基体间应力配分机制的变化。Liss 等人^[54]利用同步辐射高能 X 射线衍射原位分析了 53Ti47Al 材料从 300 K 加热到 1075 K 的相变过程。上海交通大学 Xue 等人^[55]使用同步辐射 X 射线衍射研究了单晶基体上的激光增材制备的镍基高温合金 DZ125L 的晶体取向和缺陷分布, 发现 AM 外延晶粒和基体晶粒之间的界面区域存在由高密度位错以及亚晶产生的约 3° 的取向差, 减小外延生长的缺陷密度对较少大角度晶界、获得良好力学性能非常关键。

最近,快速同步辐射 X 射线衍射的办法用来揭示 SLM 制造过程中的显微组织的演化和热温度梯度的变化,提供了采用 X 射线影像所不能提供的新的信息。Zhao 等人^[10]展示了同步衍射可以用来捕获 SLM 制造过程中的相变过程。Thampy 等人^[56]进一步估计了在 SLM 过程中使用衍射峰漂移的时候的表面冷却速率。Hocine 等人^[9,57]实施了一个超快衍射探头来估计相变和冷却速率,通过对激光增材制造 Ti-6Al-4V 合金的动态过程进行研究,发现激光和三秒参数对打印过程中达到的温度、冷却速度和存在 β 相的持续时间有较大影响。短的扫描线会导致先期的 β 晶粒粗化,降低凝固过程的冷却速率,从而形成实质性不同的微观结构。温度和相变可以从高度瞬时的分辨率来监控,若降低分辨率易造成成像质量较低,量化分析相变、应力和液相比例相对困难。由此可见,不同的 AM 工艺对构件的最终组织有较大影响,但是在不同合金体系和工艺参数下固态相变行为还值得系统研究。

与同步辐射 X 射线衍射相比,中子衍射技术能实现大尺寸样品内部相变的表征。Pesach 等人^[58]通过获取中子飞行时间,研究了增材制造 TC4 结构的组织及织构,认为六方结构相中织构强度与打印倾斜角有关。Ma 等人^[59]和 Beese 等人^[60]通过中子衍射技术分别研究了 AM 过程中 Inconel 625 的晶体取向和压缩变形过程中晶格的畸变过程,认为晶体织构对动态应变时效现象具有显著影响,但未阐述位错与溶质原子交互作用对高温合金硬化行为的影响。Shen 等人^[61,62]采用原位中子衍射技术研究了热循环影响下送丝电弧增材制造铁铝金属间化合物的相变行为,明确了升温阶段合金中依次为 $\text{Fe}_3\text{Al} \rightarrow \text{FeAl}$ 相变、 FeAl 相有序向无序转变和 Fe_3Al 相由不完全有序的 B2 结构向完全有序的 DO3 结构转变的相变机制。

4 研究的不足

增材制造作为先进制造业的典型代表,被各国广泛关注。2012 年,美国提出的《先进制造业国家战略计划》,将增材制造与人工智能等一并作为未来工业发展的重要支柱。2 年后,欧盟正式启动“地平线 2020”研发创新计划,建立了增材制造技术平台以推动先进制造技术的快速发展。中国在金属增材制造技术领域起步较晚,2017 年中国国家工信部印发的《高端智能再制造行动技术(2018-2020 年)》,力争建立较为完善的增材指导产业体系。总体而言,目前中国增材制造能力虽然有所提升,但在整体技术上与国际水平尚存差距,主要体现在增材制造重大基础瓶颈问题上未得到实质性突破。为在未来全球增材制造产业链上抢

占有利位置,借助中国散裂中子源和上海同步辐射光源等大科学装置在引领材料科技前沿探索方面的独特优势,需针对增材制造熔池冶金、凝固、内应力、组织相变以及缺陷等超常材料制备与成形等关键科学问题开展进一步深入研究。

目前,中国借助同步辐射和中子衍射技术在增材制造钛合金、铝合金、镍基合金以及合金钢等金属材料的熔池冶金缺陷调控方面还缺少系统性分析研究,主要体现在:1) 熔池冶金动力学行为及内部缺陷的同步辐射原位测试分析;2) 微熔池超常冶金动力学特征及瞬态热质传输行为;3) 多场耦合下冶金缺陷形成机理及控制行为。

在预防增材制造过程中变形和开裂,以及控制增材构件几何尺寸精度方面的研究工作,尚需深入开展的材料热物理相关基础研究有:1) 增材构件内应力原位中子衍射表征技术;2) 周期性、非稳态、长期热循环作用下构件热应力、相变应力和系统约束应力的演化规律及其与增材制造工艺条件和零件结构的关联关系;3) 增材制造过程中零件热-力的非稳态耦合交互作用及其对零件变形、开裂行为的影响分析;4) 增材制造内应力累计开裂的预防控制技术。

金属 AM 过程经历了多周期、变循环、剧烈加热和冷却的短暂热历史,不同部位的材料均经受了一系列短时、变温、非稳态、强约束的固态相变过程。这种微热处理的加热及冷却速度极快、相变持续时间极短、而且每一微热处理的相变温度、加热及冷却速度和相变持续时间均随热循环次数的变化而变化,导致 AM 金属构件的显微组织结构复杂。因此,有必要深入研究增材制造超常凝固以及短时循环固态相变的基础科学问题有:1) 超高温梯度强度和强约束下移动熔池快速凝固非均匀形核与长大动力学特征及凝固组织演化规律;2) 高性能金属增材制造过程中非稳态热循环下金属相变形核与长大行为、显微组织特征及演化规律等。以上增材制造过程中的瞬态行为,均离不开同步辐射和中子衍射的原位分析。

5 结语

提升基础创新能力是中国增材制造产业达成正向设计能力,全面推广技术示范应用的重要支撑。目前,金属增材制造技术未来的应用发展主要呈现 2 个方面的趋势:一方面是针对技术本身的研究,主要涉及细小纯净的粉末制备技术和高效整体化制备能力;另一方面,是以工程应用为目标,突破传统技术壁垒,以适应不断发展的个性化制造技术需求。具体包括如下几个方面。

1) 向近无缺陷、高精度、新材料成形方向发展。高精度无缺陷是增材制造典型航天用高性能钛合金、高温合金等复杂薄壁型腔构件的重要考量指标。因此, 高精密切削技术是近年各国研究的热点。2021 年, 全国首台微米级激光选区激光熔化设备 (Micro-SLM) 在北京机科国创轻量化科学研究院有限公司投入运行, 成形精度从 100~200 μm 提高至 <20 μm , 构件表面粗糙度 R_a 从约 10 μm 提高至 1 μm , 适合增材制造高精密切削个性化部件。从批量化工程应用角度考虑, 目前成熟的增材制造粉末多以 Ti-6Al-4V、Inconel718 等有限的材料为主, 反应出新材料离工程化应用仍有较多基础性问题需要解决, 如成形表面球化、内部缺陷形成机理、组织性能与高精度协同调控等方面尚需强化增材制造的基础理论研究, 围绕本文所述的金属材料增材制造中的关键共性问题, 当新材料增材制造过程中熔池瞬态凝固, 成分和相变特征复杂时, 相关逆向推演研究就难以实施。而常规研究方式无法清晰揭示瞬时熔池的冶金反应、缺陷萌生、组织生长等过程时, 同步辐射光源及中子散裂源等国家大科学装置则有效地弥补了常规材料表征技术的短板, 为金属关键构件增材制造的“成形/成性一体化”主动控制技术的研发提供了科研渠道。

2) 向需求引领、多学科交叉、技术联动的方向发展。依托同步辐射光源、中子散裂源等国家大科学装置, 完善计量体系, 开发增材制造计量测试平台, 更加精准地监控制造流程, 揭示金属材料在增材制造过程中的微观组织、力学性能变化, 研究优化工艺流程, 提升增材制造产品的综合性能。加大跨领域合作, 鼓励增材制造专业与计算机、材料、数学、光学等基础学科, 以及航天航空、机械、生物等应用学科加强合作, 强化科学技术与创新的“双向互动”, 密切基础与应用生产对接, 围绕国防、科工、医疗等产业需求, 拓展大科学装置应用于关键核心技术的基础研究, 解决增材制造“卡脖子”的技术瓶颈, 开辟从“0→1”具有极高科学价值的创新科研途径, 引领增材制造产学研用联动发展。

参考文献 References

- [1] Wang Huaming(王华明). *Acta Aeronautica et Astronautica Sinica*(航空学报)[J], 2014, 35(10): 2690
- [2] Yang Pinghua(杨平华), Gao Xiangxi(高祥熙), Liang Jing(梁菁) *et al.* *Journal of Materials Engineering*(材料工程)[J], 2017, 45(9): 13
- [3] Liu Wei(刘伟), Li Neng(李能), Zhou Biao(周标) *et al.* *Journal of Mechanical Engineering*(机械工程学报)[J], 2019,

55(20): 128

- [4] Wang Yandong(王沿东), Zhang Zhewei(张哲维), Li Shilei(李时磊) *et al.* *Materials China*(中国材料进展)[J], 2017, 36(3): 168
- [5] Zhao Shaoyang(赵少阳), Tang Huiping(汤慧萍), Chen Gang(陈刚) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2018, 47(12): 3853
- [6] Chen Y H, Clark S J, Leung C L A *et al.* *Applied Materials Today*[J], 2020, 20: 100 650
- [7] Leung C L A, Marussi S, Atwood R C *et al.* *Nature Communications*[J], 2018, 9: 1
- [8] Hojjatzadeh S M H, Parab N D, Yan W T *et al.* *Nature Communications*[J], 2019, 10: 1
- [9] Hocine S, Swygenhoven H V, Petegem S V *et al.* *Materials Today*[J], 2020, 34: 30
- [10] Zhao C, Fezzaa K, Cunningham R W *et al.* *Scientific Reports*[J], 2017, 7: 3602
- [11] Calta N P, Wang J, Kiss A M *et al.* *Review of Scientific Instruments*[J], 2018, 89(5): 55 101
- [12] Drakopoulos M, Connolley T, Reinhard C *et al.* *Journal of Synchrotron Radiation*[J], 2015, 22(3): 828
- [13] Wolff S J, Wu H, Parab N *et al.* *Scientific Reports*[J], 2019, 9(1): 962
- [14] Cunningham R, Zhao C, Parab N *et al.* *Science*[J], 2019, 363(6429): 849
- [15] Leung C L A, Marussi S, Towrie M *et al.* *Additive Manufacturing*[J], 2018, 24: 647
- [16] Martin A A, Calta N P, Khairallah S A *et al.* *Nature Communications*[J], 2019, 10(1): 1987
- [17] Sun Kai(孙凯), Li Tianfu(李天富), Chen Dongfeng(陈东风). *Atomic Energy Science and Technology*(原子能科学技术)[J], 2020, 54(1): 35
- [18] Wu E D, Sun G A, Chen B *et al.* *Acta Materialia*[J], 2013, 61(7): 2308
- [19] Dong Ping(董平), Wang Hong(王虹), Li Jian(李建) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2016, 45(12): 3197
- [20] Daymond M R, Preuss M, Clausen B. *Acta Materialia*[J], 2007, 55(9): 3089
- [21] Malamud F, Santisteban J R, Alvarez M A V *et al.* *Journal of Applied Crystallography*[J], 2014, 47(4): 1337
- [22] Zhang Chaowu(张超武), Zhou Lian(周廉), Tang Xiande(唐先德) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2006, 35(9): 1367
- [23] Langh R V, James J, Burca G *et al.* *Journal of Analytical*

- Atomic Spectrometry*[J], 2011, 26(5): 949
- [24] Jang Xiaoming(姜晓明), Wang Jiuqing(王九庆), Qin Qing(秦庆) *et al. Scientia Sinica Physica, Mechanica & Astronomica*(中国科学: 物理学、力学、天文学)[J], 2014, 44(10): 1075
- [25] Wang X L, Holden T M, Rennich G Q *et al. Physica B: Condensed Matter*[J], 2006, 385-386: 673
- [26] Dann J A, Daymond M R, Edwards L *et al. Physica B: Condensed Matter*[J], 2004, 350(1-3): 511
- [27] Harjo S, Aizawa K, Ito T *et al. Materials Science Forum*[J], 2010, 652: 99
- [28] Xavier M S, Yang S, Comte C *et al. The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*[J], 2020, 106(5-6): 1601
- [29] Calta N P, Martin A A, Hammons J A *et al. Additive Manufacturing*[J], 2020, 32: 101 084
- [30] Zhou X, Wang D Z, Liu X H *et al. Acta Materialia*[J], 2015, 98: 1
- [31] Cunningham R, Narra S P, Montgomery C *et al. JOM*[J], 2017, 69(3): 479
- [32] Cunningham R, Nicolas A, Madsen J *et al. Materials Research Letters*[J], 2017, 5(7): 1
- [33] Sangid M D, Book T A, Naragani D *et al. Additive Manufacturing*[J], 2018, 22: 479
- [34] Guo Q L, Zhao C, Qu M L *et al. Additive Manufacturing*[J], 2019, 28: 600
- [35] Wu Zhengkai(吴正凯), Wu Shengchuan(吴圣川), Zhang Jie(张杰) *et al. Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 2019, 55(7): 811
- [36] Sandgren H R, Zhai Y W, Lados D A *et al. Additive Manufacturing*[J], 2016, 12: 132
- [37] Zhang Nan(张楠), Chu Mingqiang(初铭强), Ma Yanling(马艳玲) *et al. Electric Welding Machine*(电焊机)[J], 2019, 49(4): 73
- [38] Bouchard P J, George D, Santisteban J R *et al. International Journal of Pressure Vessels & Piping*[J], 2005, 82(4): 299
- [39] Paddea S, Rao Delin(饶德林), Ye Jin(叶晋) *et al. Welding & Joining*(焊接)[J], 2020(2): 16
- [40] Ramjaun T, Stone H J, Karlsson L *et al. Science and Technology of Welding and Joining*[J], 2014, 19(1): 44
- [41] Thibault D, Bocher P, Thomas M *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2010, 527(23): 6205
- [42] Thomas S H, Liu S. *Science and Technology of Welding & Joining*[J], 2014, 19(5): 392
- [43] Prakash R, Gangradey R. *Fusion Engineering and Design*[J], 2013, 88(9-10): 2581
- [44] Cottam R, Wang J, Luzin V. *Journal of Materials Research*[J], 2014, 29(17): 1978
- [45] Masoomi M, Shamsaei N, Winholtz R A *et al. Data in Brief*[J], 2017, 13: 408
- [46] Wang Z Q, Stoica A D, Ma D *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2018, 714: 75
- [47] Wang Z Q, Stoica A D, Ma D *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2017, 707: 585
- [48] Martina F, Roy M J, Szost B A *et al. Materials Science and Technology*[J], 2016, 32(14): 1439
- [49] Chen K, Huang R Q, Li Y *et al. Advanced Materials*[J], 2020, 32(12): 1 907 164
- [50] Dye D, Stone H J, Watson M *et al. Metallurgical & Materials Transactions A*[J], 2014, 45(4): 2038
- [51] Kenel C, Schloth P, Petegem S V *et al. JOM: the Journal of the Minerals, Metals & Materials Society*[J], 2016, 68(3): 978
- [52] Kenel C, Grolimund D, Fife J L *et al. Scripta Materialia*[J], 2016, 114: 117
- [53] Mu J, Zhu Z W, Su R *et al. Acta Materialia*[J], 2013, 61(13): 5008
- [54] Liss K D, Whitfield R E, Xu W *et al. Journal of Synchrotron Radiation*[J], 2009, 16(6): 825
- [55] Xue J W, Zhang A F, Li Y *et al. Scientific Reports*[J], 2015, 5(1): 14 903
- [56] Thampy V, Fong A Y, Calta N P *et al. Scientific Reports*[J], 2020, 10(1): 1981
- [57] Hocine S, Petegem S V, Frommherz U *et al. Additive Manufacturing*[J], 2020, 34: 101 194
- [58] Pesach A, Tiferet E, Vogel S C *et al. Additive Manufacturing*[J], 2018, 23: 394
- [59] Ma D, Stoica A D, Wang Z Q *et al. Materials Science and Engineering A*[J], 2017, 684: 47
- [60] Beese A M, Wang Z Q, Stoica A D *et al. Nature Communications*[J], 2018, 9(1): 2083
- [61] Shen C, Hua X M, Reid M *et al. Journal of Alloys and Compounds*[J], 2020, 826: 154 097
- [62] Shen C, Liss K D, Reid M *et al. Journal of Alloys and Compounds*[J], 2019, 778: 280

Review on Key Common Technologies of Metal Additive Manufacturing Based on Synchrotron Radiation and Neutron Diffraction Analysis

Zhang Nan^{1,3}, Wang Miaohui¹, Zhang Shuyan², Ge Xueyuan¹, Zhang Ping¹, Li Jing¹, Zhang Zhihao³

(1. Beijing National Innovation Institute of Lightweight LTD, Beijing 100083, China)

(2. Centre of Excellence for Advanced Materials, Dongguan 523808, China)

(3. University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

Abstract: The metal additive manufacturing technology has the intrinsic characteristics of “micro-area super-metallurgy” and “rapid cooling & solidification”. Realizing the dynamic monitoring and control of the evolution of defects, stress and organization in the additive manufacturing process is currently the difficulty and hotspot of the international frontier research in this field. In this paper, starting from the key common problems of metal additive manufacturing in the fields of aeronautical & space and automobile, the research progress of metal additive manufacturing, based on two methods of synchrotron radiation and neutron diffraction, showed in the following aspects: metallurgical dynamics in metal additive manufacturing and in-situ analysis of its internal defects, super conventional solidification of liquid metal, microstructure and phase transition process, formation and evolution of internal stress. Subsequently, the deficiencies of the research progress were explained, and the future development of metal additive manufacturing was prospected.

Key words: additive manufacturing; synchrotron radiation; neutron diffraction

Corresponding author: Zhang Nan, Ph. D., Senior Engineer, Beijing National Innovation Institute of Lightweight LTD, Beijing 100083, P. R. China, Tel: 0086-10-60603546, E-mail: zhangnan@camtc.com.cn