

ITER 第一壁模块 Be/Cu 连接失效分析

刘丹华, 王平怀, 李 前, 杨 波, 金凡亚, 谌继明*, ITER 屏蔽包层组
(核工业西南物理研究院, 成都 610041)

摘 要: 为了分析 ITER 第一壁模块试制过程中 Be/Cu 界面经热等静压扩散连接后出现的不可接受的大尺寸缺陷, 对 Be/Cu 连接失效的模块进行了破坏性试验。首先采用线切割对模块进行解剖, 并对连接界面缺陷区域及非缺陷区域通过金相观察、SEM 观察及能谱分析进行对比, 初步确定了界面连接的失效机理。

关键词: ITER; 第一壁; CuCrZr 合金; Be/Cu 连接; 热等静压; 爆炸焊

中图分类号: TL62⁺¹

文献标志码: A

1 引言

国际热核实验堆(ITER)将是第一个实现稳态磁约束核聚变反应的聚变堆, 其第一壁的部件将承受来自聚变燃烧等离子体的高热负载和强中子壁负载, 平均中子载荷为 $0.5\text{MW}\cdot\text{m}^{-2[1]}$ 。目前在 ITER 屏蔽包层设计中, 第一壁主要由铍、CuCrZr 合金以及结构材料不锈钢组成, 起到屏蔽高热负荷的作用, 最高热负荷达到 $4.7\text{MW}\cdot\text{m}^{-2}$ 。由于第一壁在较高的温度和热应力脉冲疲劳下工作, 因此对第一壁的加工制作要求较为苛刻。在制作 ITER 第一壁模块时, 最后一步是通过低温 HIP 工艺将铍瓦连接至 CS 基座的 CuCrZr 侧。

为了评价中子辐照对 ITER 第一壁增强热负荷部件性能的影响, 尤其是对 Be/Cu 连接性能的影响, 在完成第一壁部件认证前提交一部分小尺寸中子辐照模块到 ITER 国际组进行辐照试验。中子辐照对面对等离子体部件运行寿命有着决定性的影响, 因此制作与第一壁部件加工工艺相同的中子辐照模块进行辐照试验十分必要。但在试制过程中, 辐照模块超声检测发现 Be/Cu 连接界面容易出现不可

接受的缺陷。为了分析模块 Be/Cu 连接失效机制, 介绍了中子辐照模块的制作, 根据 Be/Cu 连接界面的超声检测结果对模块进行解剖, 以及采用 SEM 观察及 EDS 分析的手段对解剖试样界面进行考察, 初步确认了 Be/Cu 界面连接失效的主要原因为连接界面的残余应力。

2 实验

2.1 原材料

铍材为西北有色金属研究院提供的中国 VHP-Be, 其 BeO 含量小于 1%(质量分数), 室温拉伸延伸率 3%~7%, 室温极限拉伸强度 350~450MPa 之间, 平均晶粒尺寸小于 $14\mu\text{m}$ 。CuCrZr 合金的化学成分为: Cr 占 0.71%, Zr 占 0.088%, Co<0.01%, Nb<0.01%, Ta<0.01%, O 占 0.0004%, 其余为 Cu。初始处于冷轧+时效复合处理状态, 具有较高的强度^[2]。不锈钢为 316L(N)-IG, 其原材料为固溶态的冷轧板材, 铁素体含量小于 0.5%, 晶粒度为 5~6 级, 室温抗拉强度为 270MPa。

2.2 模块制作

收稿日期: 2016-09-09; 修订日期: 2017-03-28

基金项目: 四川省青年科技创新团队专项 (2016TD0015)

作者简介: 刘丹华(1983-), 女, 四川达州人, 副研究员, 硕士研究生, 从事聚变堆材料研究。

*通讯作者: 谌继明(1964-), 男, 四川隆昌人, 研究员, 博士生导师, 从事聚变堆材料研究。

模块所用铍材尺寸规格为 51mm×12mm×6mm, 镀膜前需对 Be 瓦进行清洗。之后在 Be 瓦表面制作 Ti 和 Cu 的涂层, 以隔离 Be、Cu 在热等静压过程中两材料间的热扩散。涂层工艺为先在 Be 瓦 HIP 待连接面涂 10 μ m 的 Ti 层, 再在 Ti 层上涂 40 μ m 的 Cu 层。

CuCrZr/SS 复合板是通过两种板材以爆炸焊的方式连接形成, 复合板需加工到要求的尺寸后再进行冷却通道的加工。之后再采用激光焊的方式将带有冷却通道的 Cu/SS 盖板与 SS 背板连接形成铜不锈钢(CS)基座。

为了保证 Be/Cu 接头连接质量, 还需要保证在连接过程中环境为惰性气体或高真空, 防止在连接过程中母材表面再次发生氧化, 试验中所有零部件都在 HIP 工艺前经过真空烘烤除气处理。对除气后的镀膜 Be 瓦与 CS 基座在 HIP 包套内完成装配, 通过 TIG 焊接完成包套的初步闭合, 之后在对包套内的部件进行最终除气工艺。对除气后的包套夹封并放入 QIH16 型热等静压设备中进行 Be/Cu 连接。实验中, Be/Cu 热等静压连接温度 580 $^{\circ}$ C, 压力 150MPa, 时间 2h。

2.3 检测与分析

模块检测包含两方面内容, 一为无损检测, 另为破坏性检测。前者评价连接界面质量和模块冷却通道的气密性, 后者评价连接界面的微观结构和连接性能。试验中先采用超声波探伤检测 Be/Cu 连接质量, 对于有不可接受大尺寸缺陷显示的模块再通过破坏性检测进行界面连接失效分析。

2.3.1 超声波检测

超声检测采用点聚焦水浸探头, 斑点为 1mm, 焦距大于 50mm, 扫描间隔为 1mm, 探头频率 10MHz。检测采用的对比试块是与模块 Be/Cu 连接工艺相同的 Be/Cu HIP 连接件, 缺陷反射体是在 Cu 侧加工的直径为 0.5~2mm 的平底孔。扫描部件前, 先用通过对比试块检测系统灵敏度。图 1 为制作完成的模块照片以及 Be/Cu 界面超声检测结果, 界面回波强于 2mm 平底孔的被记录为红色。从图 1 中可以看出 Be 瓦表面由于氧化已失去金属光泽。另

外, 从模块 Be/Cu 界面超声探伤结果可以看出, Be/Cu 界面存在从尺寸为几个毫米到几十个毫米大小不等的缺陷分布。

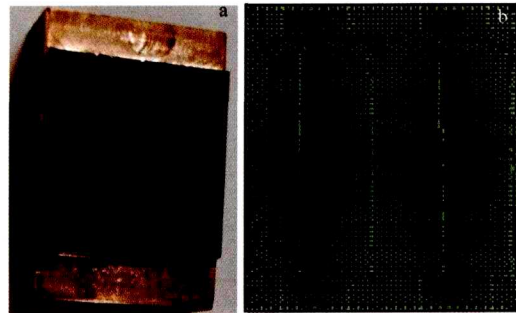


图1 中子辐照模块及其 Be/Cu 界面超声检测结果
a——中子辐照模块; b——模块 Be/Cu 界面超声检测结果。

2.3.2 破坏性检测

由于模块超声波检测结果显示 Be/Cu 界面出现不可接受的大尺寸缺陷, 为了进一步深入分析连接界面的失效机理, 采用了破坏性检测的方式对模块 Be/Cu 界面进行考察, 以便直观分析模块连接界面缺陷的特征。实验中对缺陷模块进行了解剖取样, 观察对比分析 UT 缺陷区与非缺陷区 Be/Cu 界面的形貌及成分分布, 进一步考察模块在热等静压连接过程中 Be/Cu 界面连接失效机制。

由于线切割具有良好的加工精度, 几乎所有的切削热都能被切屑及冷却液带走, 切割时在工件中产生的内应力最小^[3], 因此在进行模块解剖时选择以线切割的方式沿图 2 蓝色直线轨迹进行切割取样。在线切割解剖过程中发现模块缺陷区域局部 Be 瓦自行脱落。对脱落 Be 瓦界面一侧进行能谱分析, 结果如图 3 所示。从 Be 瓦界面处的形貌图片可以看出, 其表面分布有一定数量的显微孔洞, 而通过 O 和 Ti 两种元素的能谱分析结果可以看出, 在这些孔洞区域存在这两种元素的富集。

将解剖试样 Be/Cu 界面截面进行磨抛形成金相试样, 然后对 UT 缺陷区及非缺陷区的试样进行微观显微观察。试样界面截面的能谱分析结果如图 4 所示。从图 4 中发现, 超声检测显示的缺陷区域存在 Be/Ti 界面的开裂, 而对于非缺陷区域的界面,

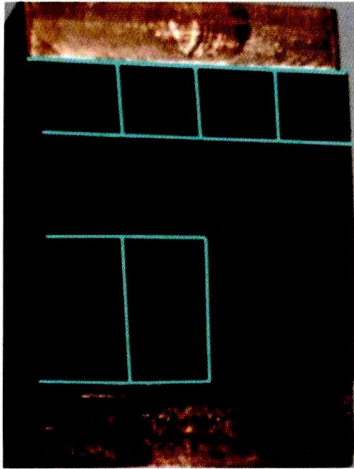


图 2 模块线切割解剖轨迹

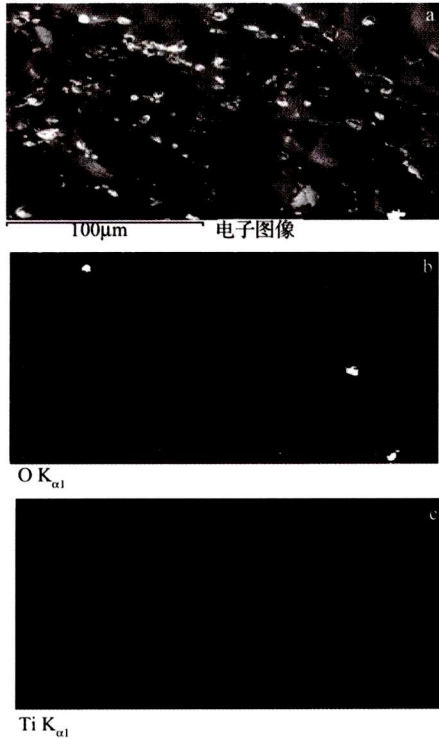


图 3 模块脱落 Be 瓦界面 SEM 形貌及 EDS 分析结果

没有发现明显的裂纹。另外，从能谱分析谱线趋势可以看出，Cu/Ti 界面两元素谱线呈平缓下降趋势，而 Be/Ti 界面的 Ti 呈急剧下降趋势。这说明未开裂区域 Ti/Cu 界面存在明显的元素间互扩散，而 Be/Ti 界面的元素互扩散并不明显。因此，该模块的失效主要原因可能是 Be/Ti 界面扩散不充分导致，结合

界面处电子形貌照片中裂纹的位置及能谱趋势线可看出，BeCu 界面开裂主要出现在 Ti 层近 Be 侧。

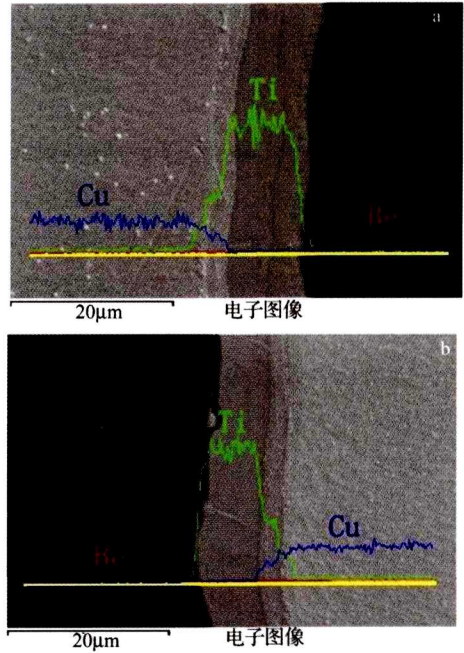


图 4 模块 Be/Cu 界面 SEM 形貌及 EDS 能谱分析结果
a—非缺陷区；b—缺陷区

为了更好地分析剥落 Be 瓦的表面特征，实验中选取了一块涂层前的 Be 瓦进行扫描电镜观察以对比两者在形貌上的差异。图 5 中分别为两种 Be 瓦的表面形貌，可以看出，涂层前 Be 瓦表面分布了大量的孔洞，同时呈现凹凸起伏的表面形貌，对于模块脱落 Be 瓦而言，其表面依然呈现于涂层前 Be 瓦类似的凹凸起伏形貌，不同的只是表面孔洞被一些白色物质填满，结合图 3 中对剥落 Be 瓦的能谱分析结果发现，模块脱落 Be 瓦孔洞中的白色物质主要成分为 Ti 和 O。因此，两种 Be 瓦表面观察分析结果比较说明，HIP 后模块脱落 Be 瓦表面除了孔隙中残留了少量 Ti，其表面与涂层前 Be 瓦无明显差异，同时也没有发现明显的断裂形貌特征。故可以初步判定在 HIP 过程 Ti/Cu 界面发生了冶金结合，但 Be/Ti 界面在很大程度上尤其是剥落 Be 瓦区域主要为物理贴合，几乎不存在元素的扩散。

为了进一步明确失败模块的失效机制，随后对

实验中多个 Be/Cu 连接失败的模块也采用了同样的方式进行了破坏性检测，切割过程中剥落铍瓦界面分析结果如图 6 所示。

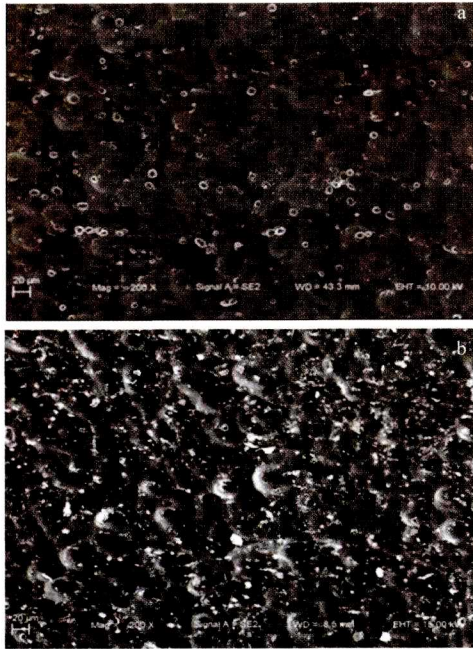


图 5 涂层前及模块剥落 Be 瓦表面形貌
a——涂层前 Be 瓦表面形貌；b——模块剥落 Be 瓦表面形貌

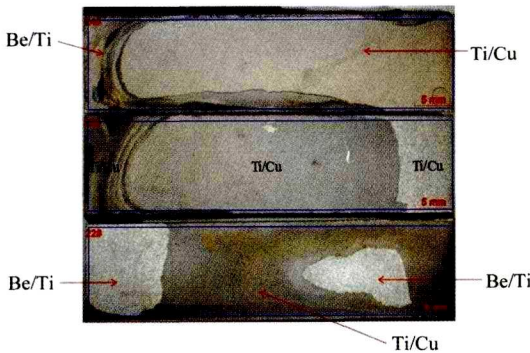


图 6 剥落 Be 瓦连接界面侧宏观形貌及成分组成

从图 6 宏观照片可以看出，脱落 Be 瓦表面均呈现出不同颜色的几个区域。为了进一步明确不同区域的物质构成，对每个区域进行能谱分析，其结果分别如图 7 和图 8 所示。图 7 为 Be/Ti 扩散区，可以看出 Be/Ti 扩散区的 Be、Ti 呈斑驳残留分布。

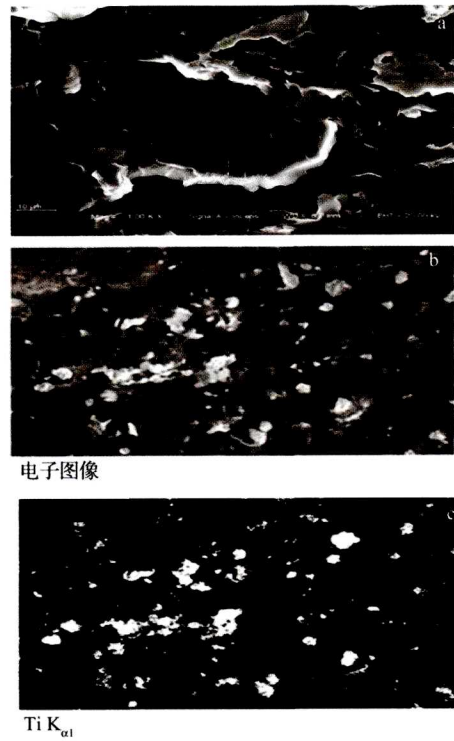


图 7 Be 侧界面 Be/Ti 区域形貌及能谱分析结果

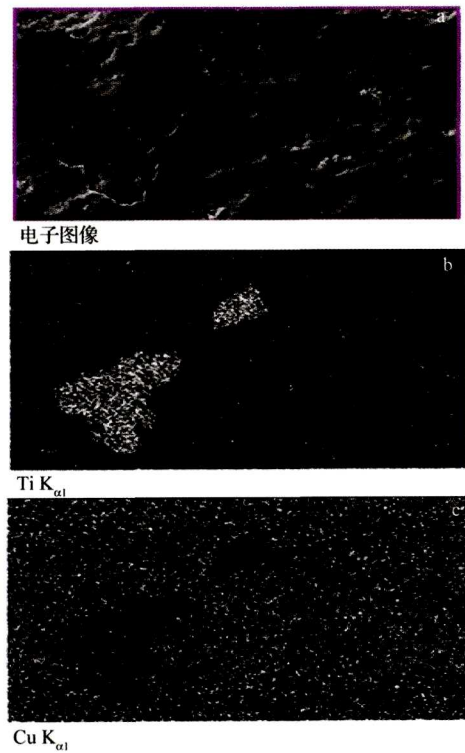


图 8 Be 侧界面 Ti/Cu 区域形貌及能谱分析结果

图 8 为 Cu/Ti 扩散区, Cu/Ti 扩散区虽然都存在 Cu、Ti 两种元素, 但不同区域扩散层元素含量并不相同, 一些区域能谱分析结果显示 Cu 元素含量较高, 而另一些区域则显示 Ti 元素较高。以上结果说明, 颜色不同的区域存在不同的元素组成, 主要分为 Be/Ti 扩散区和 Cu/Ti 扩散区, 因此模块界面连接失效不只发生在 Be/Ti 界面, 在 Cu/Ti 界面也存在大面积的连接失效。

研究发现^[4]当采用 Ti 作为中间层在 580℃ 进行热等静压扩散连接时, Be、Ti 之间很难发生扩散, 几乎没有 Be-Ti 二元金属间化合物生成。而在此温度下, Cu/Ti 界面最容易生成的是自由能相对较低的 Ti_3Cu_4 、 Ti_2Cu_3 和 $TiCu_4$, 因此从 Be 端到 Cu 端扩散层的物相组成为: α -Ti 固溶体、 Ti_3Cu_4 (存在一定量 Ti_2Cu_3) 和 $TiCu_4$ 。结合实验中失效模块的破坏性检测数据发现, Ti 层虽然有效阻止了 Be、Cu 之间相互扩散形成有害脆性金属相, 但在温度 580℃、压力 150MPa、时间 2h 的热等静压扩散连接参数下, Ti 在 Cu 中的扩散距离明显大于在 Be 中的扩散距离, 即发生了不对称扩散。由于 Be/Ti 界面扩散不充分, 其结合强度相对于 Cu/Ti 界面自然较低, 因此在外力存在时, Be/Ti 界面将优先开裂失效。

异种材料在扩散连接时, 由于异种材料及界面生成物之间的物理、化学性能的差异——主要是热膨胀系数的差异和扩散性能差异, 导致物理结合还是冶金结合, 会直接导致接头中产生残余应力^[5]。对接头有害的较大的残余应力区域分布在膨胀系数较小的母材靠近焊缝附近的地带, 残余应力的最大值则出现在其脆性面及焊缝附近靠近接头边缘的微小区域。另外, 两种材料经热等静压复合后的残余应力主要在降温过程中形成的^[6]。在 ITER 第一壁模块制作中, Be、Ti 和 Cu 在 HIP 温度下的热膨胀系数分别约为 $16 \times 10^{-6} K^{-1}$ 、 $9.1 \times 10^{-6} K^{-1}$ 和 $17.8 \times 10^{-6} K^{-1}$, 铍与铜热膨胀系数相当, 但都与中间层 Ti 的热膨胀系数差异相对较大。在降温过程中, Ti 层表面的收缩量比 Be 或 Cu 的收缩量都小, Be/Ti 及 Ti/Cu 界面处由于两侧材料收缩不一致将形成剪切力。因此, 膨胀系数较小的 Ti 层靠近连接

界面附近的微小区域及界面脆性相上的残余应力的分布特征是影响接头性能的关键因素。HIP 后模块接头处较大的残余应力存在于 Be/Ti 界面或 Ti/Cu 界面, 但由于 Ti/Cu 界面处 Cu 相对于 Be 塑性更好, 界面处的剪切应力在一定程度上能够被 Cu 层的塑性形变行为吸收, 因此微裂纹更可能在 Be/Ti 界面或界面扩散区即相对薄弱区进行萌生并扩展, 最终发展为宏观开裂导致 Be/Cu 连接失效。

对失效模块解剖后的界面观察分析结果显示, 对于 Be 瓦试样界面侧仅残留 Ti 的缺陷区域而言, 其表面并没有明显的断裂特征, 但 Cu/Ti 发生了明显的扩散。因此, 可以判定其连接失效主要发生在 Cu/Ti 扩散后同时 Be/Ti 还没来得及扩散的阶段。在此情况下, Be/Ti 界面处几乎没有连接力的作用, 因此在热等静压扩散连接冷却阶段, 随着不同材料间发生纵向不均匀收缩, Be/Ti 界面在两种材料间剪应力的作用下轻易地发生了剥离开裂。对于 Be 瓦试样界面侧既残留有 Ti 又残留 Cu 的模块而言, 界面的表面有明显的脆性解理断裂特征, 因此可以判定其连接失效发生在 Be/Ti/Cu 三种元素互扩散之后的热等静压冷却阶段。因为在此阶段 Be/Ti 及 Cu/Ti 界面均在一定程度上承受了由于横向各向异性所导致的剪应力。尽管 Cu 的塑性相对较好, 能通过一定程度形变来缓解应力的作用, 但形变程度有限, 最终也在应力的作用下发生了开裂。

3 结果与讨论

针对 ITER 增强热负荷第一壁中子辐照模块试制过程中出现的铍铜连接质量问题进行了失效分析。采用热等静压技术连接铍瓦和 CuCrZr 合金, 超声检测发现连接界面上存在不可接受的大尺寸缺陷, 且部分铍瓦还发生了自行脱落。为了寻找 Be/Cu 连接失效原因, 采用了破坏性检测的方式先对模块进行线切割解剖, 再结合光学电镜及扫描电镜对模块超声检测非缺陷区及缺陷区的 Be/Cu 界面进行对比观察分析。

结果发现, 与非缺陷区界面相比, 超声检测缺陷区的 Be/Cu 界面处存在尺寸较大较宽的宏观裂

纹。在对界面的微观观察中发现,部分模块 Be/Cu 连接界面的失效主要发生在 Be/Ti 界面处,且存在 Be、Ti 在热等静压过程中没有发生冶金结合的现象。同时也存在一些模块 Be/Cu 连接失效,既发生在 Be/Ti 界面同时也发生在 Cu/Ti 界面。通过微观观察发现此类失败模块中 Be、Ti、Cu 均发生了互扩散。模块的失效几乎都是在 Be/Cu 热等静压连接冷却阶段,由于不同材料的热膨胀系数差异,导致材料间在冷却过程中发生不均匀收缩,在 Be/Ti 及 Ti/Cu 界面处形成了有害的剪应力。残余应力首先以微裂纹的方式优先在相对薄弱 Be/Ti 界面萌生并扩展,同时在 Ti/Cu 界面脆性金属间化合物等相对薄弱区域也发生类似的裂纹缺陷,最终在残余应力释放的过程中逐步演变形成大尺寸宏观开裂,导致 Be/Cu 界面连接失效。

参考文献:

- [1] Ioki K, Akiba M, Cardella A, et al. Progress on design and R&D of ITER FW/blanket [J]. Fusion Engineering and Design, 2002, 61-62: 399-405.
- [2] Barabash V R, Kalinin G M, Fabritsiev S A, et al. Specification of CuCrZr alloy properties after various thermo-mechanical treatments and design allowables including neutron irradiation effects [J]. J. Nucl. Mater., 2011, 417:904-907.
- [3] 贾春燕. 机加工中残余应力的产生和处理 [J]. 机械, 2010, 31(s1): 79-81.
- [4] 谭佳梅. Be/Cu 合金热等静压扩散连接工艺及机理研究 [D]. 重庆: 重庆大学, 2007.
- [5] 何鹏, 冯吉才, 钱乙余. 异种材料扩散连接接头残余应力的分布特征及中间层的作用 [J]. 焊接学报, 2002, 23(1): 76-80.
- [6] 董平, 李瑞文. 热等静压复合残余应力的分布研究 [R]. 中国核学会材料分会 2007 年度学术交流会, 2007, 339-341.

Failure analysis of Be/Cu joint in ITER first wall mock-ups

LIU Dan-hua, WANG Ping-huai, LI Qian, YANG Bo,
JIN Fan-ya, CHEN Ji-ming, ITER Shield Blanket Team
(Southwestern Institute of Physics, Chengdu 610041)

Abstract: ITER first wall mock-ups were fabricated by joining CuCrZr and 316L(N) stainless steel with explosion welding, machining cooling channel, and then bonding Be tiles on CuCrZr interface with a hot isostatic pressing (HIP) technology, but a few large scale defects on the Be/Cu joint interface were observed by ultrasonic testing. In order to guarantee the mock-up quality, destructive tests were performed on these failed mock-ups. Samples were observed with optical microscope and SEM, and the possible cause of the defects formation was identified preliminarily.

Key words: ITER; First wall; CuCrZr alloy; Be/Cu joint; Hot isostatic pressing; Explosion welding