



金属激光增材制造微观结构和缺陷原位实时监测

赵沧^{1,2*}, 杨源祺^{1,2}, 师博^{1,2}, 邵文洁^{1,2}, 陈帅雷^{1,2}

1. 清华大学机械工程系, 北京 100084;

2. 清华大学先进成形制造教育部重点实验室, 北京 100084

* 联系人, E-mail: cangzhao@tsinghua.edu.cn

2022-04-17 收稿, 2022-05-03 修回, 2022-06-01 接受, 2022-06-10 网络版发表

国家自然科学基金(52175332)和清华大学启动经费资助

摘要 在过去10年中, 金属激光增材制造行业快速发展. 但是, 制品的精度、可重复性、可靠性仍相当有限. 本文围绕金属激光增材制造中的微观结构和缺陷展开, 聚焦于相关原位实时监测的研究进展. 相比事后剖析的传统表征技术, 同步辐射X射线高速成像与衍射等原位实时监测技术可以对微观结构和缺陷的形成与演化过程进行直接观测, 正在推动研究思路从试错模式向关键机理模式的根本转变. 展望未来10年, 多元技术融合和多维信息转录以及衍生的大数据分析 with 高精度仿真, 将连接起微观的机理理解与宏观的性能调控, 推动金属激光增材制造行业行稳致远.

关键词 金属增材制造, 微观结构, 缺陷, 原位, 同步辐射, X射线成像与衍射

金属激光增材制造(additive manufacturing, 俗称3D打印)是金属材料快速成形技术(rapid prototyping)的工业化应用^[1,2]. 根据国际标准(ISO/ASTM 52900:2021), 主要分为两类: 粉末床熔融成形(laser powder bed fusion)和定向能量沉积成形(directed energy deposition)^[3]. 相比而言, 粉末床熔融成形更加成熟和普及, 具有更高的成形精度和复杂结构适应性^[4,5]. 在一个典型的成形过程中, 基于一个离散化的三维数字模型, 高功率激光快速扫过一层金属粉末颗粒(厚度一般不超过100 μm), 有选择性地粉末颗粒熔化和融合. 激光粉末床熔融成形亦被称为激光选区熔化, 是由激光选区烧结发展而来^[6,7].

与传统制造技术(如减材加工和等材制造)相比, 金属激光增材制造具有更高的设计自由度、更短的产品研发周期、更节能环保的制造工艺以及实地按需的定制选项^[8~14]. 因此, 在过去的30多年中, 特别是近10年,

该技术快速发展, 在医疗、航空航天、国防等领域呈现出广阔的应用前景^[15~18]. 但是, 对于航空发动机涡轮叶片等尖端应用, 该技术目前仍处于初步阶段, 制品的精度、可重复性和可靠性仍相当有限.

从微观角度出发, 金属激光增材制造技术的瓶颈主要表现在两方面: 一是对微观缺陷(如孔洞和微裂纹)的防止和消除, 二是对微观结构(如晶粒结构和非平衡相)的精细调控. 这两个问题目前还未被有效地解决. 究其难点, 我们缺少对底层科学问题的深入理解, 没有强大的理论支撑. 此外, 激光增材制造的过程涉及过多的因素和变量, 简单通过试错法(基于经验、反复迭代)几乎不可能在有限的时间内获得最优解. 所以, 为了理解并从根本上控制微观结构和缺陷, 我们需要获得底层的数据支持. 传统的表征技术(如电子背散射衍射)往往是静态的事后剖析, 提供的信息非常有限^[19,20]. 而我们更需要的是原位、动态过程信息, 这依赖于原位实

引用格式: 赵沧, 杨源祺, 师博, 等. 金属激光增材制造微观结构和缺陷原位实时监测. 科学通报, 2022, 67: 3036–3053

Zhao C, Yang Y Q, Shi B, et al. *Operando* monitoring microstructures and defects in laser fusion additive manufacturing of metals (in Chinese). Chin Sci Bull, 2022, 67: 3036–3053, doi: [10.1360/TB-2022-0439](https://doi.org/10.1360/TB-2022-0439)

时监测技术的发展。

本文将围绕金属激光增材制造中的微观结构和缺陷展开,概述相关原位实时监测的研究进展。首先,将介绍多种原位实时监测技术,特别强调同步辐射X射线高速成像与衍射。然后,将论述这些技术在理解微观结构和缺陷方面的应用,着重于近5年的重要进展。最后,将分析金属激光增材制造原位实时监测的研究特点和趋势。期望能够加强相关机构和人员对于原位实时技术的认识,进而推动金属激光增材制造行业基于关键机理和大数据分析质的突破。

1 原位实时监测概述

金属激光增材制造的过程具有高度动态、瞬变和局域化的特点^[21~24]。为了实现原位实时监测,我们需要足够的空间和时间分辨率(如10 μm 和10 μs)。其中,空间分辨率主要取决于激光束线的光斑尺寸和金属粉末的颗粒尺寸(均为几十微米量级),而时间分辨率主要取决于激光-金属的相互作用时间(几十微秒量级,可以通过激光光斑尺寸和扫描速率来估算)。在过去的六七年中,金属激光增材制造原位实时监测的研究在世界范围内呈快速增长的趋势,涵盖了高速可见光成像、热成像、超声检测、积分球、同步辐射X射线高速成像与衍射等技术^[23,25~30]。这在一定程度上反映了各国政府、工业界和学术界对金属激光增材制造未来前景的高度关注和对相关基础研究的大力支持。

目前,常用的原位实时监测技术主要有高速可见光成像和热成像。它们适合集成到金属增材制造装备中,可提供样品表面或以上的信息,比如熔池的表面温度分布和几何形状、颗粒飞溅、金属蒸气羽等。这些信息对于理解微观结构和缺陷的形成与演化,以及建立制造工艺与成形质量的映射关系至关重要。代表性的科研机构包括我国武汉大学、华中科技大学、北京理工大学、湖南大学^[31~34],美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室^[25,35],英国帝国理工学院、赫瑞-瓦特大学等^[27,29]。如图1(a)所示,赫瑞-瓦特大学借助高速可见光成像技术研究了不锈钢合金激光粉末床熔融增材制造中颗粒飞溅和金属蒸气羽的关系^[27]。结果表明,颗粒飞溅的方向与金属蒸气羽的喷射方向有关,而后者取决于熔池的几何形状。准确地说,金属蒸气羽的喷射方向取决于熔池内蒸气凹陷区或者匙孔的几何形状,可通过改变激光束线的光斑尺寸、辐照功率、扫描速率等基本参数来控制^[36~38]。在图1(b)中,帝国理工学院采用

一套自研的双波长高速热成像系统(双波长分别为700和950 nm)监测了钛合金激光粉末床熔融增材制造中的熔池行为,并计算了熔池表面的温度梯度(5~20 K/ μm)和冷却速率(1~40 K/ μs)^[29]。相比通常的热成像仪^[39~41],该系统除了具有较高的空间、时间分辨率和数据采集帧频(如20 μm 、10 μs 和100 kHz),还不需要预知金属的发射率,并具有较大的成像视野(如2.5 mm $\times$ 2.5 mm),但是同样面临金属蒸气羽等因素可能带来的测量误差以及如何准确确定熔池边界等问题。

其实,金属激光增材制造中许多重要的物理现象和微观缺陷都在表面以下,比如熔池动力学、匙孔动力学、气泡和微裂纹等。但是,金属材料往往不透明。因此,实验室用X射线技术和超声检测技术亦被应用于监测激光制造过程中材料内部的微观结构和缺陷。代表性的科研机构包括日本大阪大学^[42,43]、德国弗劳霍恩研究所^[44]、瑞士联邦材料科学与技术研究所^[45]、美国宾夕法尼亚州立大学等^[30]。如图2(a)所示,大阪大学较早将X射线成像技术引入实验室来观察铝合金激光深熔焊中的匙孔^[42]。在高功率激光加热下,匙孔的形貌剧烈涨落,而且一些较大的气泡在匙孔底部间歇性地产生。然而,由于有限的光子通量(如 10^{10} photon/s),实验室用X射线成像的空间和时间分辨率都非常有限(如10 μm 和1 ms):一方面,难以分辨匙孔形貌的细节;另一方面,难以捕捉气泡形成的初始瞬间。在超声检测方面,如图2(b)所示,宾夕法尼亚州立大学采用浸没式超声技术监测了铝合金激光加热过程中的熔池行为^[30]。研究表明,经熔池边界散射的超声波飞行时间(time of flight, TOF)与熔池深度的演化密切相关。相比实验室用X射线成像,超声检测的时间分辨率要高得多,可以达到纳秒。遗憾的是,它的主要问题在于超声信号难以被直接准确解读,往往需要与其他技术进行结合。

进一步,美国阿贡国家实验室利用同步辐射X射线高速成像与衍射技术实现了对金属激光增材制造中匙孔动力学、熔池动力学、颗粒飞溅、快速凝固、非平衡相变等微观过程的原位实时观测^[23]。该高速技术的细节见第2节,这里仅概述代表性的直接观测结果。如图3(a), (b)所示,该实验室分别揭示了激光定点加热中匙孔气泡的形成过程和柱状枝晶的生长细节。当激光停止加热后,匙孔上部前后壁闭合而形成气泡。整个闭合过程只用了不到50 μs (图3(a))。另一方面,在等待了一段时间后,柱状枝晶才开始生长。随着时间的推移,

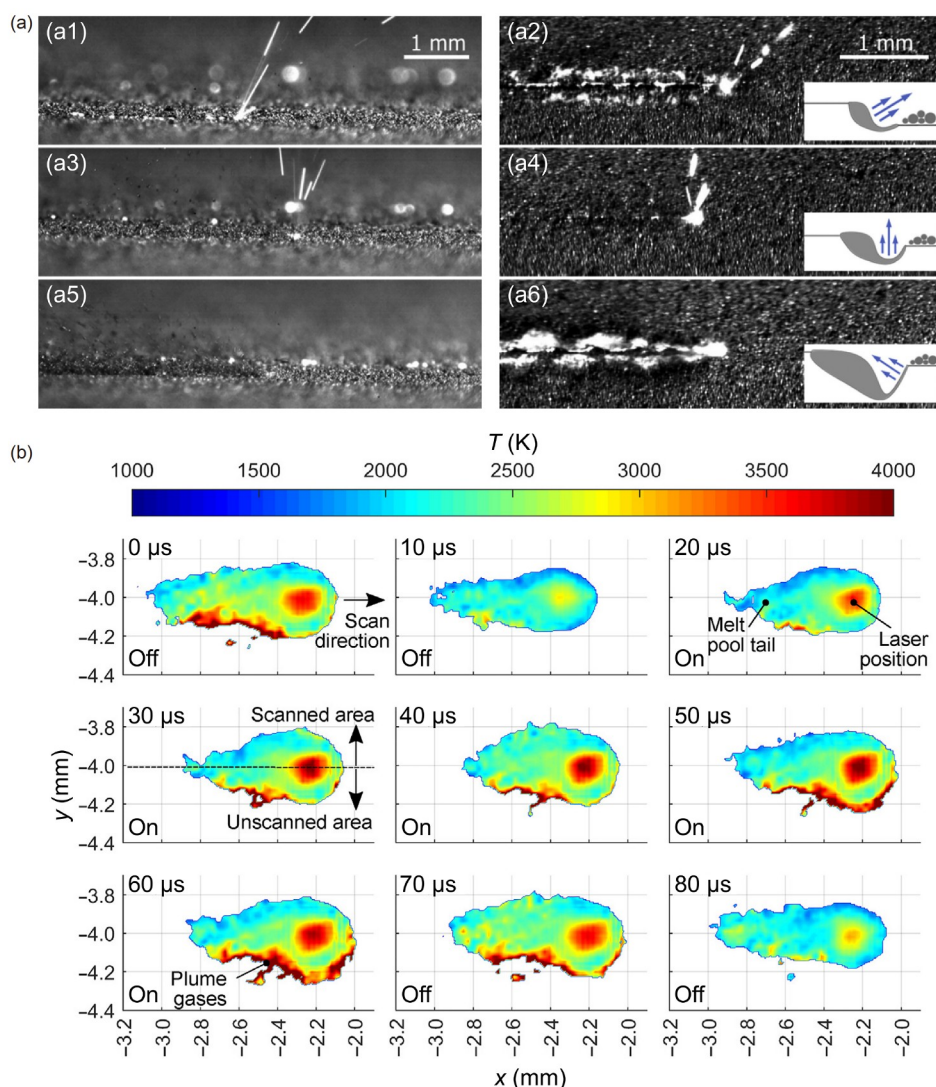


图 1 (网络版彩色)高速可见光成像和热成像的典型监测结果. (a) 不锈钢合金激光粉末床熔融成形中颗粒飞溅的高速可见光成像^[27]. (a1, a3, a5) 为侧视图; (a2, a4, a6) 为对应的俯视图. (a2, a4, a6) 中的插图为熔池和金属蒸气羽的示意图. (b) 钛合金激光粉末床熔融成形中熔池表面的高速热成像^[29]. 连续激光经调制器调制为脉冲激光输出. 单个脉冲开始于 13 μs, 完成于 68 μs

Figure 1 (Color online) Representative monitoring data from high-speed visible-light and thermal imaging. (a) High-speed visible-light imaging of metal spattering in laser powder bed fusion of stainless steel^[27]. (a1, a3, a5) Side views; (a2, a4, a6) top views. The insets in (a2, a4, a6) are schematics of melt pool shape and vapor plume ejection. (b) High-speed thermal imaging of melt pool surface in laser powder bed fusion of titanium alloy under modulated laser illumination^[29]. The output pulsed laser was obtained from a continuous-wave laser through a modulator. The laser pulse started at 13 μs and finished at 68 μs

其生长呈现曲线式的轨迹(图3(b)). 图3(c)呈现的是激光制造过程中的物相变化. 随着时间的推移, 我们可以看到一些强衍射斑点, 其对应着粗大晶粒. 它们先从液相中生长出来, 最后转变成细小晶粒. 相比实验室用X射线, 由于高得多的光子通量(如 10^{16} photon/s), 同步辐射X射线高速成像与衍射技术的空间、时间和能量分辨率都要高几个数量级(微米、亚纳秒和 10^{-4} 量级), 可

用来研究密度比较高的金属材料(如镍基高温合金). 而相比超声检测, 该技术更直接, 空间分辨率也更高. 此后, 在世界范围内, 越来越多的科研机构开始应用同步辐射X射线高速技术研究金属激光增材制造过程中的关键问题. 除阿贡国家实验室外, 具有代表性的还包括美国卡内基梅隆大学^[37,46]、劳伦斯利弗莫尔国家实验室^[47,48]、英国曼彻斯特大学、伦敦大学学院、原子能

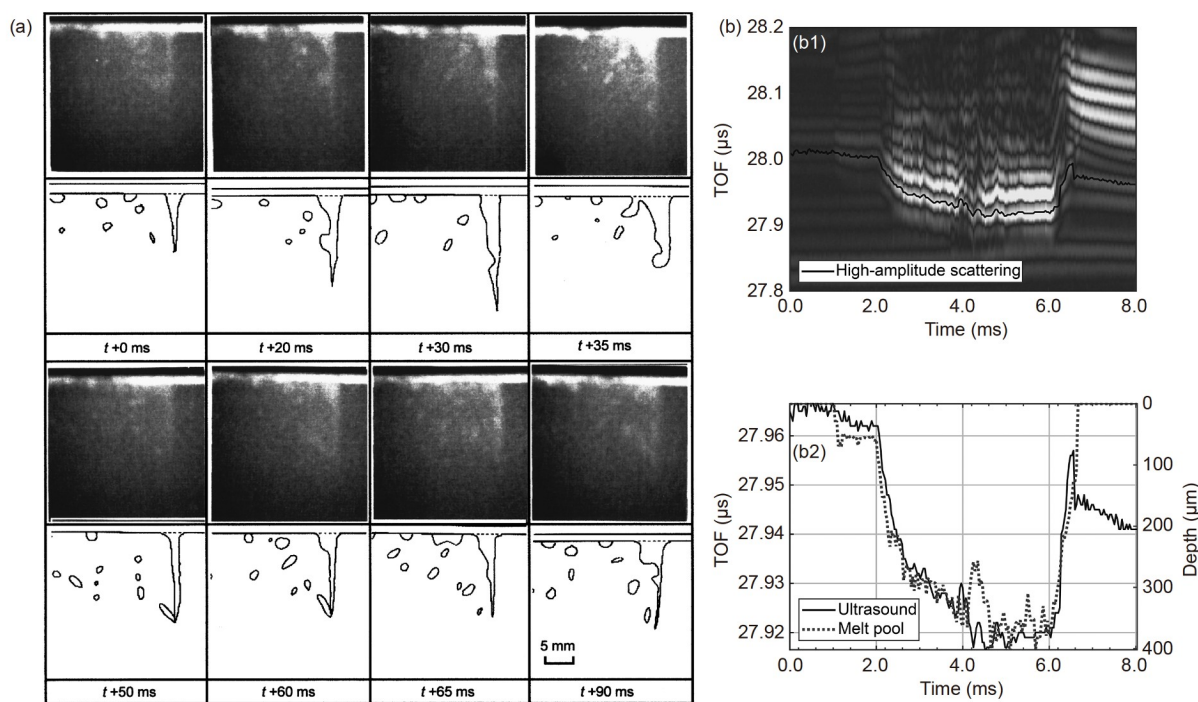


图2 实验室用X射线成像和浸没式超声的典型监测结果。(a) 铝合金激光深熔焊中匙孔和气泡的实验室用X射线成像^[42]。(b) 铝合金激光定点加热过程中熔池行为的超声在线监测^[30]。(b1) 超声波飞行时间(time of flight, TOF)的时间历史;(b2) 熔池深度的时间历史。激光定点加热起始于1 ms, 结束于6 ms

Figure 2 Representative monitoring data from laboratory X-ray imaging and ultrasound. (a) Laboratory X-ray imaging of keyhole and keyhole pores in deep-penetration laser welding of aluminum alloy^[42]. (b) Ultrasound monitoring the melt pool behavior of aluminum alloy under stationary laser illumination^[30]. (b1) The time of flight (TOF) of the ultrasound scattering from the melt pool and (b2) the melt pool depth measured from the synchrotron X-ray imaging as a function of time, respectively. The laser heating started at 1 ms and finished at 6 ms

管理局^[49~51], 以及我国清华大学等^[24]。

在金属激光增材制造原位实时监测方面, 除上面提到的科研机构, 其他比较活跃的机构主要包括美国洛斯阿拉莫斯国家实验室、SLAC国家加速器实验室(原斯坦福直线加速器中心)、埃姆斯国家实验室、国家标准与技术研究院、斯坦福大学^[28,52~54], 英国同步辐射光源DIAMOND^[49], 欧洲同步辐射光源ESRF^[55], 德国同步辐射光源(PETRA III, DESY)、斯图加特大学、柏林工业大学^[56~58], 日本同步辐射光源SPRING-8^[59], 瑞士同步辐射光源SLS、保罗谢勒研究所^[60,61], 意大利米兰理工大学^[62], 还有我国西北工业大学、华南理工大学等^[63~65]。

总之, 目前多种原位实时技术已被应用到金属激光增材制造的过程监测中。相比而言, 同步辐射X射线高速成像与衍射技术更适用于监测金属内部微观结构和缺陷的演化, 比如气孔的形成过程。而高速可见光成像、热成像、超声检测等技术有其不可替代的优势和应用场景, 可以提供与之互补的信息, 比如熔池表面的

温度分布, 能够帮助更全面深入地理解这些微观结构和缺陷。

2 同步辐射X射线高速技术简介

相比其他几种技术, 同步辐射X射线高速成像与衍射技术更加直接, 且具有高分辨率、高穿透性等特点。在前文中, 我们简要介绍了该技术在金属激光增材制造中的典型应用。其实, 金属激光增材制造技术与同步辐射X射线高速技术的联姻才不满6年。2016年8月, 两者于美国阿贡国家实验室的先进光子源32-ID-B线站首次结合, 并获得第一批原位实时数据。部分研究成果, 包括高速成像和衍射, 于2017年6月正式发表^[23], 立即获得国际同行的广泛关注。这项工作提供了一个独特而强大的实验平台, 可以原位实时地监测增材制造过程中金属内部微观结构和缺陷的形成与演化, 推动了金属激光增材制造研究的思路转变, 从试错模式转向关键机理模式^[24,37,38,48,66]。在试错模式中, 我们往往不问过程和原因, 只看结果, 主要依据经验并通过反复迭

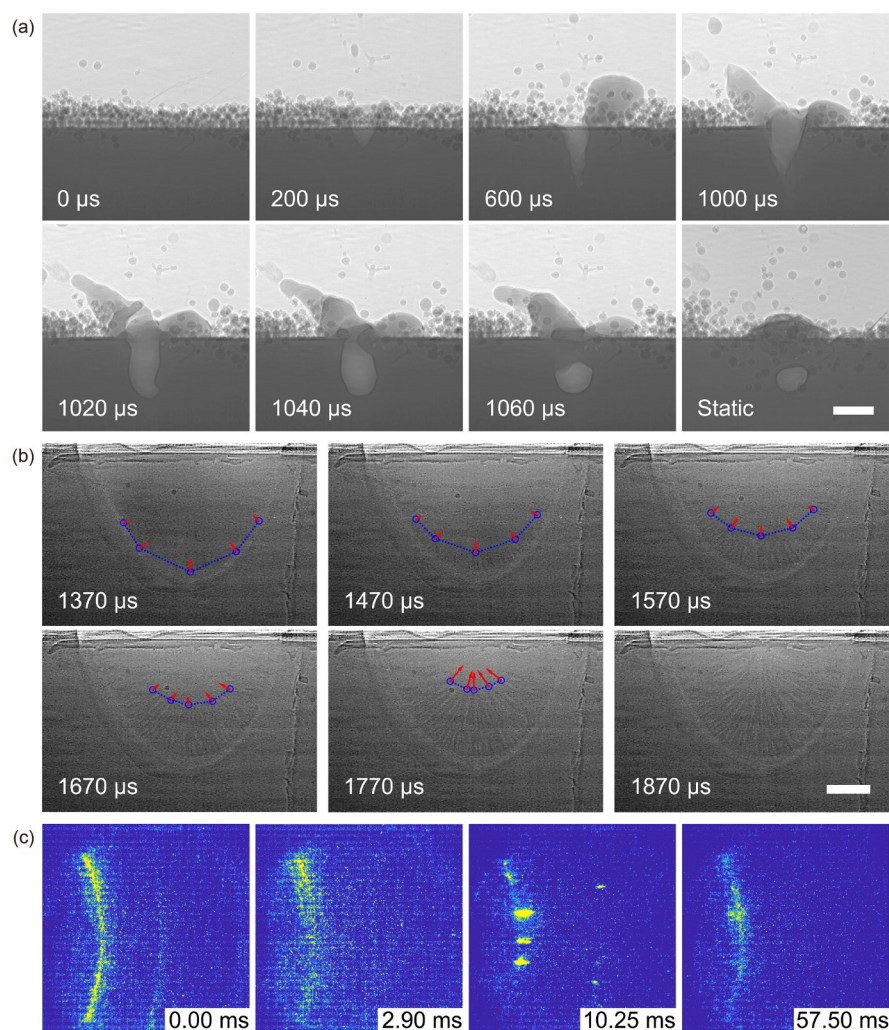


图3 (网络版彩色)同步辐射X射线高速成像与衍射的典型监测结果。(a) 钛合金激光粉末床熔融成形中匙孔气泡形成的同步辐射X射线高速成像^[23]。激光定点加热持续时间为1 ms, 标尺为200 μm 。(b) 钛合金激光定点加热中柱状枝晶生长的同步辐射X射线高速成像^[23]。激光定点加热持续时间为1 ms, 标尺为100 μm 。(c) 钛合金激光熔融过程的同步辐射X射线高速衍射。激光功率为500 W, 扫描速率为500 mm/s

Figure 3 (Color online) Representative monitoring data from high-speed synchrotron X-ray imaging and diffraction. (a) High-speed synchrotron X-ray imaging of keyhole porosity formation in laser powder bed fusion of titanium alloy under stationary laser illumination^[23]. The laser heating lasts for 1 ms, and the scale bar is 200 μm . (b) High-speed synchrotron X-ray imaging of columnar grain growth in laser fusion of titanium alloy under stationary laser illumination^[23]. The laser heating lasts for 1 ms, and the scale bar is 100 μm . (c) High-speed synchrotron X-ray diffraction in laser fusion of titanium alloy under scanning laser illumination. The laser power is 500 W, and the scan speed is 500 mm/s

代消除错误(偏差), 进而实现对目标参数(比如增材制造构件的致密度)的优化^[67,68]。受限于经验的不足和迭代的成本, 该研究模式往往适用于科学发现的早期阶段或者复杂方案的初筛阶段。而在关键机理模式中, 我们依托于原位动态的过程信息, 探寻微观结构和缺陷的起源, 致力于无缺陷理想结构增材制造的终极方案。在过去的5年多中, 该同步辐射X射线在线监测平台服务了世界范围内数十家研究机构和公司, 如美国通用电气公司(GE)和通用汽车公司(GM)^[69]。除了美国, 英

国、德国、法国、瑞士、日本等其他国家也正在大力建设同步辐射原位实时监测平台, 已经取得一些成果^[49,52,55,59,61,70]。成果不局限在激光增材制造, 还涵盖其他增材制造技术, 如黏结剂喷射成形(binder jetting)^[71]。随着上海光源二期工程、北京高能同步辐射光源HEPS等的建设, 我国金属激光增材制造原位实时监测平台也有望落地生花, 将助力我国航空发动机等重大工程关键构件和材料的研发, 提升我国在相关领域的国际影响力。

金属激光增材制造同步辐射X射线原位实时监测平台,除了同步辐射X射线光源,主要涉及一套X射线信号高速采集系统和一套金属激光增材制造模拟器^[23,26]。在美国阿贡国家实验室,前者最早由Fezzaa等人^[72,73]在混合模式下(hybrid mode)实现,并首先被用来研究燃油喷射和流体动态行为。经过技术迭代,该系统可以实现约100 ps的时间分辨率,而后者最早由同在阿贡国家实验室的Zhao等人^[23]完成。他们针对同步辐射光源的特点,完成了实验装置的研制和实验方案的设计,并于2016年8月底完成首次试运行。目前,同步辐射X射线原位实时监测平台可以实现微米空间分辨率、亚纳秒时间分辨率、 10^{-4} 量级能量分辨率、MHz数据采集帧频、毫米级金属样品穿透性等指标。需要说明的是,实际的指标参数(如分辨率)不仅与同步辐射光源的基本参数有关,还取决于研究的对象、关心的科学问题、采用的数据采集系统等很多因素。例如,为了呈现金属激光增材制造中熔池的边界(液-固界面),单脉冲X射线的曝光时间(即时间分辨率,比如100 ps)往往是不够的;厚度为1 mm的铝合金需要曝光约1 μ s,而厚度为400 μ m的镍基合金需要曝光约20 μ s^[26]。

同步辐射X射线高速技术主要包括成像和衍射。其中,成像利用的是光的显著直线传播特性,可以用来直接观测熔池和匙孔的动态行为,以及诸多微观结构和缺陷的形成与演化^[23,24,37,38,48,51],而衍射利用的是光波粒二象性中的波动性,可以用来分析制造过程中的相变、再结晶、局部温度、残余应力等信息^[23,53,58,60,61,74]。如图4(a)所示,同步辐射X射线高速成像技术主要涉及波荡器/扭摆器、狭缝、快门、快门以及一套高速成像系统^[23,26,73]。测试样品位于快门和高速成像系统之间。其中,高速成像系统主要包含闪烁体薄膜、45°角反射镜、显微物镜以及高速可见光相机。这里的成像主要存在两种衬度^[75,76]:一是吸收衬度,取决于因密度、元素、厚度等因素的不同导致材料对X射线吸收分布的差异;二是相位衬度,取决于X射线在样品中因折射、干涉、衍射等引起的相位偏移。此外,在高速成像系统的旁边,与X射线束线呈某一合适的角度,可以设置第二套样品信号采集系统,比如高速衍射系统或者热成像系统^[23,41]。在高速衍射实验中,可以使用X射线复合折射透镜(compound refractive lenses)将X射线束线进行聚焦,以提高X射线的光子通量密度。

金属激光增材制造模拟器需要根据同步辐射光源的特点和研究内容的需求设计搭建,可以用来模拟实

际的增材制造过程,并聚焦于感兴趣的微观结构演化。这里,以金属激光粉末床熔融增材制造模拟器为例(图4(b))加以简要说明。其他类型的增材制造模拟器,如定向能量沉积成形和黏结剂喷射成形,可以基于该案例进行相应的调整^[71,77]。典型的激光粉末床熔融增材制造模拟器,如图4(b1)所示,主要由激光器、传输光纤和准直器、扫描振镜、真空腔体、小型粉末床以及多个直线步进电机模组组成。其中,真空腔体主要包含激光束线进入窗口、X射线束线进出窗口、45°倾斜角观察窗口以及多个其他窗口和真空贯通件。在真空腔体的内部设有小型样品平台,上面可放置小型粉末床样品。简易的小型粉末床主要由三部分组成:一片金属基体、两片玻璃碳和一层金属粉末颗粒。如图4(b2)所示,金属基体薄片由两片玻璃碳夹在中间,形成三明治结构。玻璃碳片具有无定型、高使用温度、高抗热震性、对X射线几乎透明等特点,其高度略高于金属基体片。在由上述金属基体片和玻璃碳片组成的沟槽里,采用人工或机器方式铺上一层金属粉末颗粒。粉末床的厚度由金属基体片和玻璃碳片的高度差决定,一般可设为100 μ m。待激光完成单层扫描后,通过控制金属基体薄片的垂直位移,可以进行新一层的铺粉。

在一次典型的激光加热实验中,一般遵循下面的步骤。首先,将准备好的小型粉末床样品放置到真空腔体内部的小型样品平台上,样品的厚度沿着X射线入射方向。然后,关闭真空腔体门,采用一台机械泵抽真空,再充入高纯氩气至标准大气压。之后,打开激光控制系统,设置激光的运行模式、束斑直径、功率、扫描速率、扫描路线等参数。最后,开启激光,扫描加热粉末床样品。在加热的过程中,X射线束线穿过样品;在另一边,使用闪烁体薄膜(如单晶 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$)将透过的X射线转化为特定波长的可见光,使用一台高速可见光相机记录下该可见光的强度分布。

其实,同步辐射X射线高速技术在观测金属激光增材制造的微观过程方面也有其局限性。以成像为例,这主要是由成像的原理以及X射线的光子通量决定的。一方面,获得的成像信息是二维的。为了获得第三个维度的信息,往往需要多物理场数值模拟的辅助(需要先采用二维信息对模型进行验证和修正)。另一方面,X射线的光子通量是有限的。为了获得较高的空间、时间和能量分辨率以及合适的传热边界(以模拟真实的制造过程),样品的密度以及沿X射线入射方向的厚度均受到限制。因此,目前的相关研究大部分聚焦于单层单道

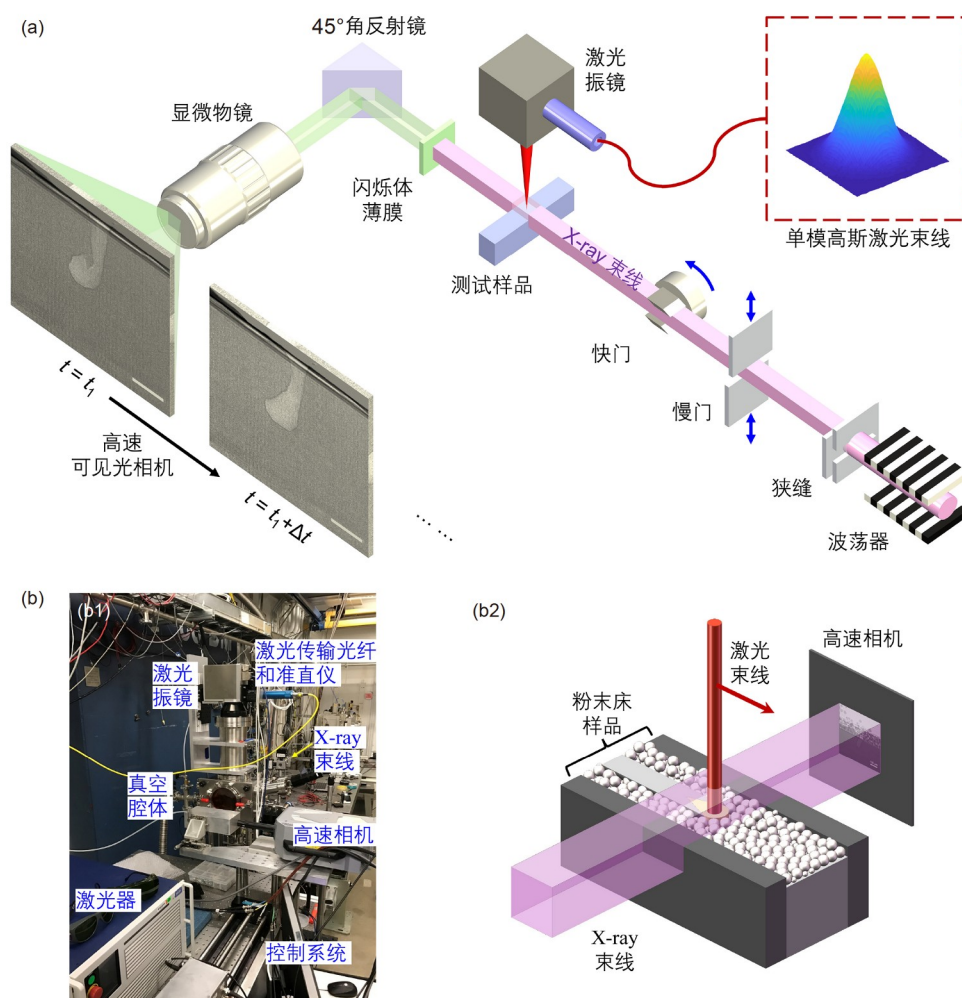


图4 (网络版彩色)同步辐射X射线高速成像实验装置。(a) 实验装置布局示意图^[37]；(b) 金属激光粉末床熔融增材制造模拟器。(b1) 位于同步辐射射线站的模拟器图片；(b2) 模拟器示意图

Figure 4 (Color online) Experimental setups for high-speed synchrotron X-ray imaging. (a) Schematic of system configuration^[37]；(b) laser powder bed fusion simulator. (b1) Photo of the simulator in a beamline hut；(b2) schematic of the simulator

实验, 较少涉及多层多道情况。通过设计合适的小型粉末床自动铺粉装置, 关于多层铺粉和扫描加热研究已经取得了初步成果^[54,78]。可能的问题在于成像数据的不干净, 即在进行多层铺粉的过程中, 粉末颗粒会落入金属基板与容器(如玻璃碳片)之间的缝隙中, 影响后续的图像分析和现象理解。相对而言, 多道熔融实验要困难些, 由于使用了较厚的样品, 得到的信息分辨率较低, 也更加复杂(前后道次的样品结构信息投射到了同一个成像平面上)。相对于成像, 衍射技术的应用目前仍处于初步阶段^[23,46], 瓶颈主要在于能量、时间和角分辨率的配合。例如, 前两者与采用的束线模式有关。相比而言, 单色光模式具有更高的能量分辨率, 而粉光模式可提供更高的时间分辨率。尽管如此, 随着新

一代同步光源的建设以及X射线像素阵列高速探测器、X射线分光等技术的发展^[79-81], X射线高速技术在激光增材制造原位实时监测方面的潜力将得到进一步释放。

3 微观结构和缺陷

金属激光增材制造中的微观结构除了熔池、匙孔, 主要涉及晶粒形态、晶粒尺寸、晶体取向、界面结构、成分均一性、相稳定性等^[82-85], 而微观缺陷(或异常)主要包括孔洞、球化、局部未熔合、颗粒飞溅、元素损失、氧化、微观残余应力与变形、微裂纹、粗糙表面等^[24,25,35,38,86,87]。其中, 微观残余应力是由极大的温度梯度和冷却速率(如 $10^6 \sim 10^8$ K/m和 $10^3 \sim 10^8$ K/s^[23,24,29,88,89])

造成的, 量级上可以超过金属的屈服强度或局部的极限抗拉强度, 从而导致晶粒尺度的变形、甚至开裂^[90]. 因此, 这里将微观残余应力与变形归类为微观缺陷(或异常), 可以通过X射线衍射、中子衍射、等离子体聚焦离子束-数字图像相关等技术来监测^[90~92]. 图5给出了微观结构和缺陷的几个典型例子. 非均匀、非致密的结构和缺陷可能严重影响部件的抗腐蚀、抗疲劳等性能^[87,93]. 例如, 航空发动机涡轮叶片中一个孔洞的存在可能严重降低疲劳寿命而造成灾难性的后果.

过去10年, 由于多种原位实时监测技术的应用, 我们对于金属激光增材制造中熔池、匙孔和微观缺陷的认识与理解得到了快速的发展. 代表性的科研机构包括美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室、阿贡国家实验室、卡内基梅隆大学^[37,38,47,48], 英国曼彻斯特大学、伦敦大学学院^[49,51,86], 以及我国清华大学、华中科技大学等^[24,33].

美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室着重于通过高速可见光成像、同步辐射X射线高速成像以及多物理场数值模拟研究金属激光粉末床熔融成形中颗粒飞溅、匙孔气泡等问题^[25,35,47,48]. 其中, 多物理场数值模拟是其理解原位实时监测数据的利器, 可以提供熔池内温度分布、流场分布等信息. 首先, 他们采用高速可见光成像技术研究了粉末颗粒的剥蚀和飞溅行为, 指出颗粒的运动是熔池几何结构、金属蒸气羽和环境气压综合作用的结果^[25]. 如图6所示, 当环境气压比较高时(如1个大气压), 金属蒸气羽和伯努利效应驱动的环境气流趋向于导致颗粒向内运动, 从而造成较少的颗粒飞溅; 而当环境气压比较低时(如27 Pa), 粉末颗粒的剥蚀愈发严重, 造成较多的颗粒飞溅. 其次, 他们指出^[35], 颗粒飞溅大多数为热飞溅, 来源于激光束线的辐照(准确地说, 来源于金属蒸气羽的挟带^[94]); 一部分为冷飞溅, 来源于环境气体的挟带; 少部分为液滴飞溅, 直接来源

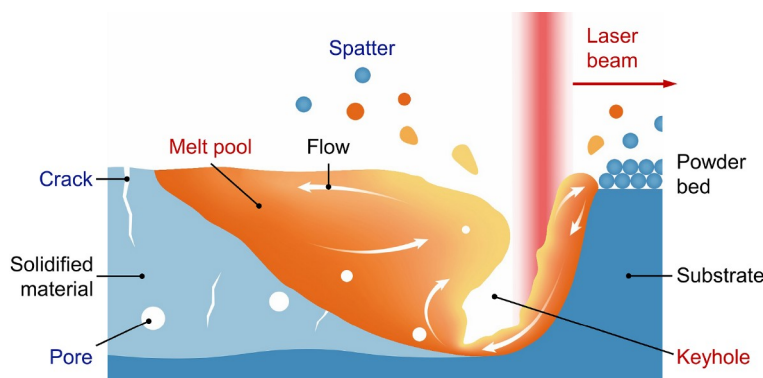


图5 (网络版彩色)金属激光增材制造中熔池、匙孔以及几种典型微观缺陷的示意图

Figure 5 (Color online) Schematic of melt pool, keyhole, and representative defects in laser fusion additive manufacturing of metals

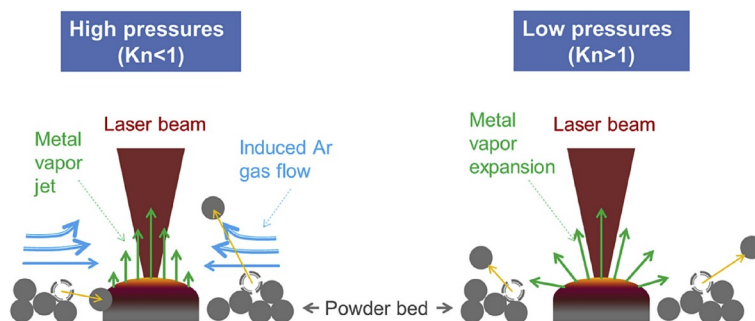


图6 (网络版彩色)激光粉末床熔融成形中环境气压对颗粒飞溅的影响^[25]. 克努森数(Kn , 无量纲数)为气体分子平均自由程与颗粒直径之比. 当环境气压较低时, 气体分子平均自由程较大. 当气体分子平均自由程大于颗粒直径时, 颗粒从环境气体中获得的动量可以忽略; 在金属蒸气的作用下, 颗粒发生较为严重的剥蚀

Figure 6 (Color online) Influence of environmental pressure on metal spattering in laser powder bed fusion^[25]. The Knudsen number (Kn , a dimensionless number) is defined as the ratio of gas mean free path to particle diameter. At low pressures, the gas mean free path is large. When it is larger than the particle diameter, the momentum transferred from the environmental gas to the particle is negligible. Driven by high-speed metal vapor, the denuded zone then increases

于匙孔边缘熔体在反冲压力作用下发生的颈缩。再者,该实验室借助于同步辐射X射线高速成像技术和多物理场数值模拟技术研究了激光扫描转折点附近孔洞的形成机理^[47,48]。由于扫描振镜发生减速和加速,深窄匙孔出现并瓦解形成气泡;之后气泡在黏性拖拽力的作用下远离匙孔,被凝固前端钉扎而形成孔洞缺陷^[66,95];孔洞的内部(经过金属蒸气冷凝后)为环境气体。

美国阿贡国家实验室及其合作者主要研究了金属激光熔融中的匙孔行为和液滴飞溅行为^[37,38]。作为金属增材制造同步辐射X射线在线监测方向的开拓者,他们充分发挥同步辐射X射线(超)高速技术的优势,并通过细致入微的图像信息分析,深究快速现象背后的物理机制。该实验室与卡内基梅隆大学等机构合作,采用同步辐射X射线高速成像技术研究了匙孔的演化^[37]。通过定量图像分析,他们严格定义了激光的加热模式——传导、过渡和匙孔,并指出目前金属激光粉末床熔融增材制造采用的几乎所有激光加热条件均会产生匙孔^[37]。一方面,该成果打破了传统认知。一般认为,金属激光粉末床熔融增材制造需要在传导模式下进行^[19,96];由于不存在匙孔,因此在该模式下可以避免匙孔气泡的产生。另一方面,该成果通过原位实时观测直接而深刻地揭示了匙孔的内涵,即存在激光的多重反射与吸收。换句话说,匙孔与匙孔模式、匙孔气泡均无必然关联。而在熔融液滴飞溅方面,他们基于同步辐射X射线超高速成像数据,阐述了各个阶段的力学机理以及在该过程中气液流动的物理特征,发现了产生极快液滴飞溅的物理起源——匙孔前壁异常突出物由于内部剧烈而不规则的温度和压强涨落导致它的爆炸解体,进而驱动了匙孔前后壁边缘熔体的极快颈缩和分离^[38]。在之前的理论框架里(连续激光加热),液滴飞溅与过热液体表面的剧烈汽化及同时产生的反冲压力密切相关^[35,97]。受限于局域液体的过热温度,液滴飞溅的速率较低(比如在钛合金中低于20 m/s)^[23,35]。但是,在爆炸产物(金属蒸气和细小液滴)的驱动下,在钛合金中的液滴飞溅速率可以超过40 m/s。需要注意的是,导致异常突出物爆炸解体的物理根源因缺乏直接证据而尚不完全明晰,可能源自相爆炸,也可能源自蒸气爆炸,有待表征技术的进一步发展(比如纳米尺度分辨率和百兆赫兹帧频)。

如前所述,匙孔与匙孔气泡没有必然关联,我们需要规避的不是匙孔,而是匙孔气泡缺陷。因此,清华大学与卡内基梅隆大学、弗吉尼亚大学等机构合作,系

统而深入地研究了激光粉末床熔融成形中的匙孔气泡^[24]。如图7所示,他们借助同步辐射X射线高速成像技术发现,在宏观层面上,在激光功率-扫描速率空间中,匙孔气泡缺陷区域的边界清晰而平滑,且受金属粉末加入的影响甚微。进一步,借助于同步辐射X射线超高速成像技术,他们发现,在微观层面上,这些气泡缺陷的起源与匙孔根部的临界失稳有关,存在两种机理。第一种与声波有关,广泛存在于整个匙孔气泡区边界附近:匙孔根部的临界失稳在熔池中释放出声波(冲击波,具有高振幅、短脉冲、沿深度取向等特点),驱动位于匙孔根部附近的气泡快速远离匙孔,使其挣脱由于大温度梯度场导致的热毛细力的束缚。第二种与匙孔的剧烈涨落(特别是回缩)有关,存在于匙孔气泡区边界的底端:匙孔的快速回缩提供了足够的等待时间,以便气泡能够被周围快速流过的液体加速,向熔池后方运动。这里,气泡与周围液体的相对运动产生黏性拖拽力,对于气泡来说是动力。上述两种机理在同一激光增材制造条件下可以共存。气泡最终可能被凝固前端捕捉而成为气泡缺陷。在此之前,气泡仍然可能通过匙孔或者表面等通道从熔池中逃逸出来^[24,86,98]。该研究在微观层面的主要亮点是,提出并通过原位X射线成像数据间接验证了金属激光增材制造中的声波机制。声波可能来自于匙孔壁之间的碰撞、熔融液体在熔池边界的冲击、微喷射在对面气泡壁上的撞击、气泡的坍塌和反弹,针状匙孔根部的爆炸行为等。如何直接探测、识别并且抑制(或者利用)这些声波将是富有挑战的课题,需要精密的测量技术和精巧的实验设计。

相较熔池、匙孔和微观缺陷,对于晶粒结构和组织的原位实时监测仍处于初步探索阶段,目前的研究主要聚焦在对它们的调控上。具有代表性的科研机构包括美国休斯研究实验室、加州大学圣塔芭芭拉分校^[82],澳大利亚皇家墨尔本理工大学^[83,85],德国马普学会钢铁研究所等^[84]。休斯研究实验室与加州大学圣塔芭芭拉分校合作,在铝合金激光增材制造用粉末颗粒上采用纳米粒子进行修饰,以形成具有晶格匹配关系的高熔点稳定化合物,从而造成熔池冷却过程中的异质成核,进而促进等轴晶的生长并降低热裂倾向,最终实现了无裂纹高强铝合金的打印^[82]。皇家墨尔本理工大学在钛合金激光增材制造中引入铜组分,通过凝固界面前沿的组分过冷克服局域过高的温度梯度,实现了等轴高强钛合金的打印^[83]。此外,该研究机构在钛合金激光增材制造中引入高强度超声以形成大量微气泡

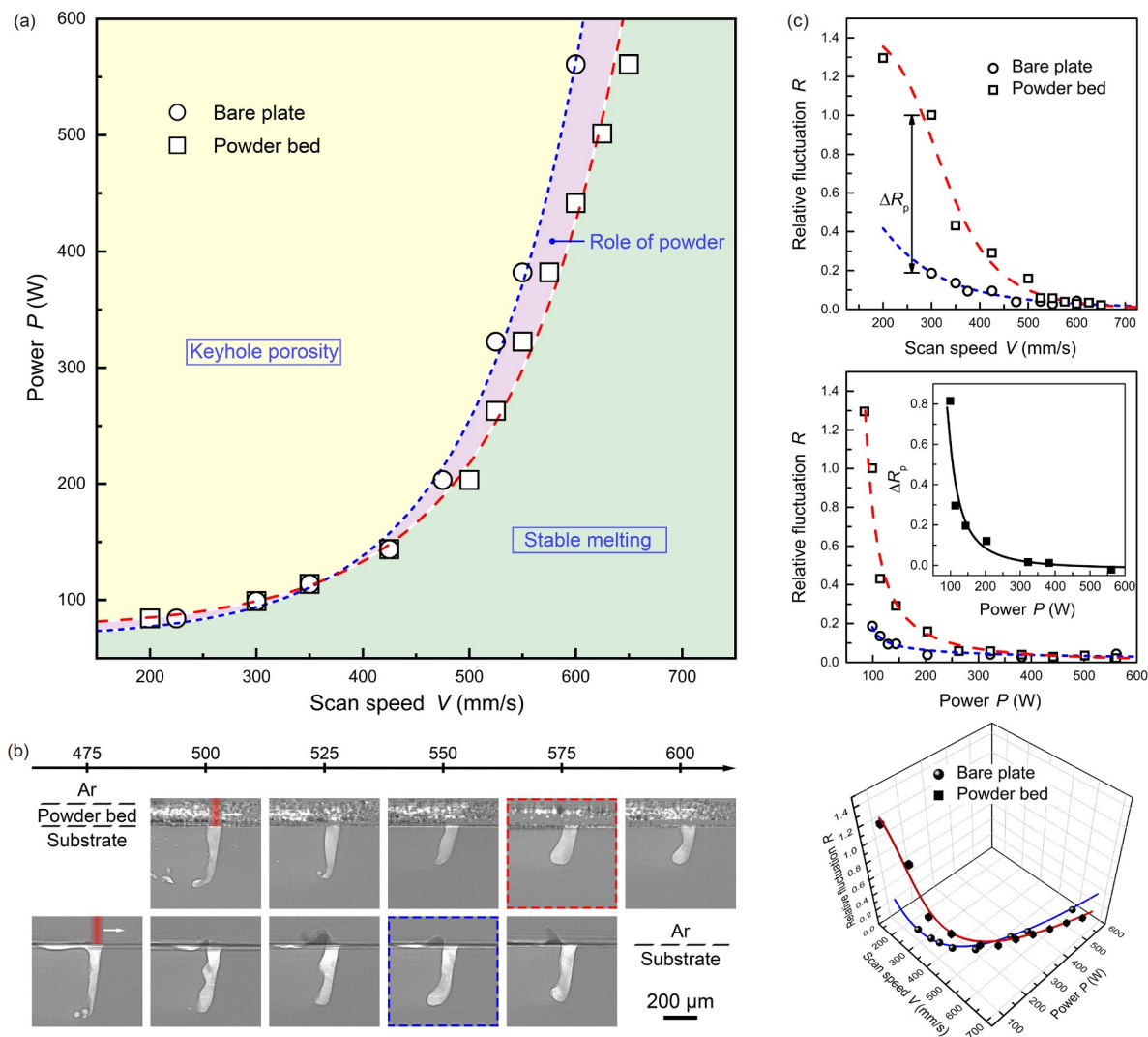


图7 (网络版彩色)金属激光粉末床熔融成形中匙孔气泡缺陷区域的边界和粉末颗粒的作用^[24]。(a) 激光功率-扫描速率空间。左上区域为匙孔气泡缺陷区, 右下区域为稳定熔化区, 中间区域呈现了金属粉末的作用。(b) 匙孔气泡缺陷区域边界附近典型的X射线照片组图。激光功率为382 W, 扫描速率变化范围为475~600 mm/s。上边为粉末床样品, 下边为金属光板样品。虚线方框分别对应着相应的边界阈值。(c) 匙孔气泡缺陷区域边界上匙孔深度的相对涨落与激光束线的扫描速率、激光功率的关系。金属粉末的加入倾向于增加匙孔的不稳定性(表现为增强的涨落和坍塌趋势), 因而拓宽了匙孔气泡缺陷区(图(a))

Figure 7 (Color online) Keyhole porosity boundary and role of powder in laser powder bed fusion^[24]. (a) Laser power-scan speed space. The top left area shows the keyhole porosity regime, the lower right area shows the stable melting regime, and the intermediate area shows the role of powder. (b) Representative X-ray images at constant laser power (382 W) and varying scan speeds (475–600 mm/s) across the keyhole porosity boundary. The top panels are for powder bed samples. The bottom panels are for bare plate samples. The dashed rectangles indicate the respective boundaries in scan speed. (c) Relative fluctuation of keyhole depth on the porosity boundary as a function of scan speed and power of the laser beam. Adding powder tends to increase the keyhole instability (i.e., strong fluctuation and collapse) and widens the porosity regime as shown in (a)

(图8(a)), 亦实现了晶粒结构的等轴化^[85]。德国马普学会钢铁研究所在金属激光增材制造过程中通过快速淬火和时效热处理实现了对马氏体形成和纳米相析出的精确控制, 进而获得了高强大马士革钢(抗拉强度1300 MPa, 延伸率10%)^[84]。尽管在这些微观结构的控制方面取得了长足的进步, 但是由于表征技术的局限

性, 比如时间、空间、能量分辨率, 绝大多数研究对于它们的认识和理解停留在大致的物理图像上, 而缺失具体细节。例如, 关于等轴高强钛合金的打印, 等轴晶何时何处形成尚未完全厘清: 其可能起源于快速凝固阶段^[83], 但是, 在之后的固相转变过程中, 该晶粒结构很可能被另一种结构取代; 也可能最初是柱状枝晶, 在

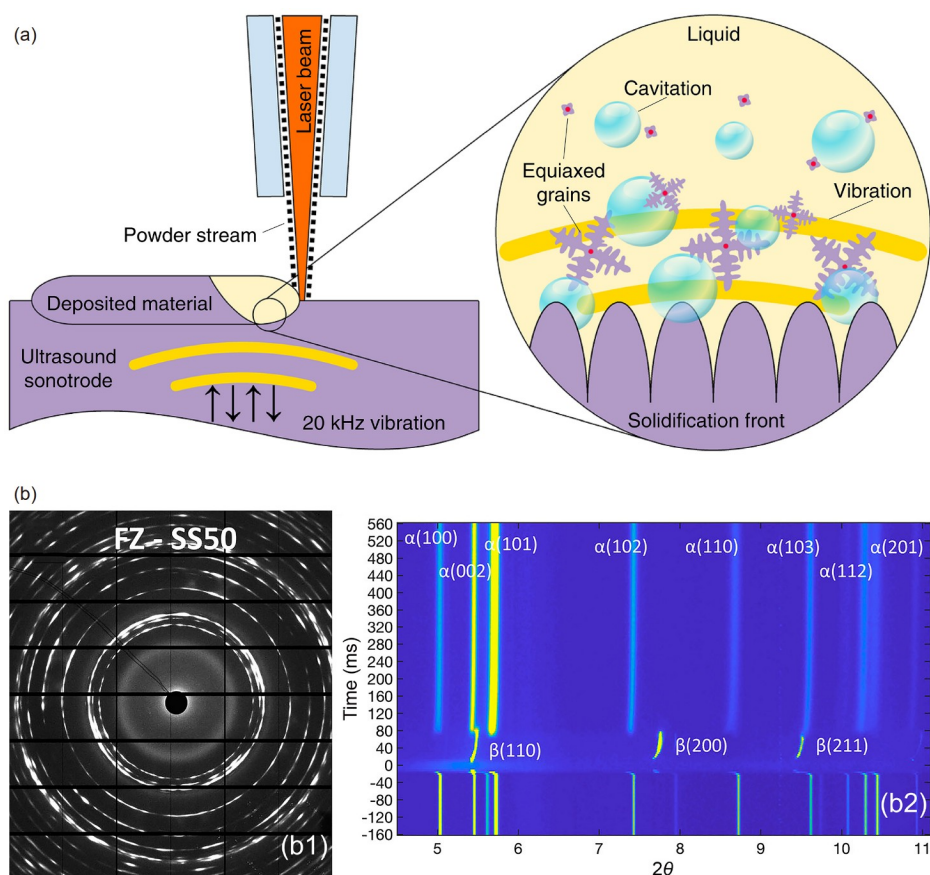


图 8 (网络版彩色)金属激光熔融成形中的晶粒结构与相组织。(a) 高强度超声辅助激光增材制造钛合金的晶粒细化^[85]。通过高强度超声产生的声空化效应和声流效应在金属凝固的过程中剧烈搅拌熔体, 从而促进微观结构的改性或者细化。(b) 钛合金激光熔融成形中的熔化、凝固和固态相变^[46]。(b1) 同步辐射高能X射线二维衍射花样(成形完冷却至室温); (b2) 衍射强度时间演化图谱。激光功率为560 W, 扫描速率为50 mm/s

Figure 8 (Color online) Grain and phase structures in laser fusion of metals. (a) Grain refinement in laser additive manufacturing of titanium alloy through high-intensity ultrasound^[85]. The acoustic cavitation and streaming effects produced by the high-intensity ultrasound can vigorously stir up the melt during the solidification process, promoting the modification and refinement of the microstructures. (b) Melting, solidification and phase transformation in laser fusion of titanium alloy^[46]. (b1) Two-dimensional high-energy synchrotron X-ray diffraction pattern after cooling down to room temperature; (b2) time-resolved diffraction intensity map. The laser power is 560 W and the scan speed is 50 mm/s

随后的固态热循环中, 某种高温相晶粒形核长大^[99]。

显然, 同步辐射X射线高速技术(特别是衍射技术)等原位实时监测技术对于理解金属激光增材制造中晶粒结构、相组织等微观结构的形成与演化提供了契机。美国阿贡国家实验室采用同步辐射X射线高速成像与衍射技术(粉光模式, 光子能量24 keV)进行了初步的尝试(图3(b), (c))^[23], 并估算了钛合金激光定点加热后冷却过程中的柱状枝晶生长速率(0.4~0.5 m/s)、相变过程的平均冷却速率(10^5 K/s)和无扩散固态相变($\beta \rightarrow \alpha'$)的转化速率(10^4 $\mu\text{m/s}$)。之后, 卡内基梅隆大学采用同步辐射高能X射线衍射技术(单色光模式, 光子能量56 keV)亦研究了钛合金激光熔融成形的相变过程^[46]。如图8(b)所示, 随着加热的进行(激光扫描速率

50 mm/s), 钛合金经历了熔化、凝固和固态相变。成形后, 衍射环呈现出连续、斑点强度不均匀的特征。通过晶格的热膨胀并结合模拟估计了局域熔融区的温度历史, 进而获得冷却速率信息。结果发现, 完全马氏体转变发生的冷却速率阈值处于2900~6500 K/s, 显著高于文献^[100]的报道值(410 K/s)。相比X射线高速衍射结果(图3(c)), 高能X射线衍射除了具有较高的能量分辨率, 其角分辨率也很高(如 0.01° , 与探测器的像元尺寸、样品与探测器的距离和取向等因素有关), 易于区分相近衍射峰演化的细节。但是, 由于单色光模式下低得多的光子通量(如 10^{12} photon/s)、X射线像素阵列探测器低得多的数据采集帧频上限(如250 Hz), 高能衍射尚不适于捕捉高度动态的相变过程(如冷却速率

10^5 K/s). 而高速衍射采用的是粉光模式、闪烁体薄膜和可见光相机, 相应的光子通量和数据采集帧频则要高得多(如 10^{16} photon/s、20 kHz). 其局限性在于, 闪烁体薄膜需要在观察时间窗口内(如10 ms)承受住中能、高通量X射线的加热和辐照^[23,101]. 由于对X射线迥异的要求(高光子能量与高光子通量难以兼得), 目前两种衍射实验需要在不同的线站完成, 以获得互补的信息来理解激光增材制造中的物相变化、残余应力等.

其他比较活跃的科研机构主要包括美国密歇根大学安娜堡分校、路易斯维尔大学、麻省理工学院、密苏里科技大学、犹他大学^[67,102~105], 英国赫瑞-瓦特大学、诺丁汉大学^[27,106,107], 德国埃尔朗根-纽伦堡大学、弗劳霍恩夫激光技术研究所、亚琛工业大学^[108~110], 意大利米兰理工、博洛尼亚大学^[111,112], 俄罗斯莫斯科国立鲍曼技术大学^[113], 还有我国北京航空航天大学、西北工业大学、华南理工大学、中国科学院金属研究所等^[114~117].

4 研究趋势分析

随着激光技术和表征技术(特别是原位实时监测技术)的发展, 金属激光增材制造相关的科学研究不断深入, 并呈现出一系列新的特点.

(1) 表征手段多样化和实时化. 在过去相当长的时间里, 我们对于熔池、匙孔、孔洞等的理解依赖于事后的剖析, 比如采用金相分析. 由于金相剖面记录了局域材料经历过的温度历史等信息, 因此通过反推, 我们可以获得对于这些微观结构和缺陷的认识. 近些年, 金属激光增材制造原位实时监测技术快速发展. 例如, 同步辐射X射线高速成像与衍射技术可以实现对金属激光增材制造过程中许多重要物理现象的直接观测. 这些原位、动态过程信息将极大地填补相关知识的缺位. 因此, 我们认为在未来数年, 对于微观结构和缺陷的理解以及随后的精细调控将迎来爆炸式的发展. 需要说明的是, 同步辐射X射线高速技术一般只适用于科学研究, 不直接适用于工业生产. 这种情况下, 可以采用技术融合, 将相关的信息通过可见光成像、热成像、积分球、超声等其他原位实时技术转录成便于生产应用的信息^[27,30,41,54,107,118,119], 比如将X射线下熔池和匙孔的行为转录成激光能量的动态吸收等. 多元原位实时技术的融合, 将连接起微观的机理理解与宏观的性能调控.

(2) 数据分析定量化和巨量化. 这是由第一个特点

决定的. 不同于离线表征(静态), 原位实时监测通过高时空分辨率和高数据采集帧频将产生巨量的数据. 以同步辐射X射线高速成像实验(单层单道, 图7(b))为例, 每个样品可以产生几百兆字节的数据, 每天可以完成几百个样品而获得上百G字节的数据, 显然简单通过人工分析已经很难处理. 如何从这些数据中快速准确地提取核心量化信息, 从而理解微观结构和缺陷的形成机理与演化规律, 将是未来研究的一个趋势. 而与深度学习等机器学习技术的联姻, 有望加快这方面的进度. 进一步, 这些核心量化信息将在微观、介观尺度上帮助建立、修正和验证高精度仿真模型^[48,120~122]. 金属激光增材制造的过程十分复杂, 目前的仿真模型仍存在很大的局限性, 比如往往忽略粉末颗粒的三维运动、流体间的碰撞、声波等. 经过多元原位实时数据的验证, 模拟仿真主要有两个作用: 一方面, 可以丰富数据库, 提供一些目前看不见或很难获得的信息, 比如熔池内三维的温度分布、流场分布等; 另一方面, 可以成为更大尺度模拟仿真的基础, 进而实现对工艺性能的高效预测和优化.

(3) 研究内容具体化和原位化. 借助于原位实时监测技术、高精度模拟仿真和大数据分析技术, 关于金属激光增材制造的研究内容正在由宏观转到微观, 而后者正在由大致物理图像转到具体关键细节. 通过这些具体关键细节, 可能发现新现象. 在深入理解它们的过程中, 将涉及材料科学、凝聚态物理、流体力学、传热传质等学科知识, 需要注重交叉融合和团队合作. 另一方面, 原位实时监测技术反馈的信息可以用来实现针对微观结构和缺陷的原位实时精细调控, 进而为未来增材制造专用新型材料的研发提供新一代的高通量制备途径和手段.

5 总结

金属激光增材制造因其先天的技术特点而成为未来科技和产业的一个制高点, 受到包括我国在内的诸多国家的战略重视. 过去10年, 该行业快速发展; 但是, 在尖端应用领域, 目前受限于微观结构和缺陷等瓶颈问题, 制品的精度、可重复性和可靠性仍相当有限. 长期以来, 由于表征技术的局限性, 绝大多数研究对于这些问题的认识和理解停留在大致的物理图像上, 具体细节缺失. 随着同步辐射X射线高速成像与衍射等原位实时监测技术的发展, 我们可以获得底层的数据支持, 从而厘清和填补这些缺失的关键物理过程和细节, 并

修正现有的或者发展新的物理模型和理论. 研究思路正在从传统的试错模式转向关键机理模式. 另一方面, 多元的原位实时监测技术反馈的信息, 可以用来实现

针对微观结构和缺陷的原位实时精细调控. 进一步, 这些信息经过技术融合和信息转录, 有望可以用来直接指导生产实践, 推动激光增材制造的跨越式发展.

致谢 感谢Tao Sun、Niranjan Parab、Anthony D. Rollett、Kamel Fezzaa、Andrew Chihpin Chuang、Yang Ren、Hua Zhou、Wenda Tan、Lianyi Chen、Brian J. Simonds、Francesco De Carlo、都东、林峰、谢惠民、常保华、谢红兰、林鑫、赵宇凡、杨亚斌、吴鑫、张鹏、何峰等人的交流与合作. 感谢编委和5位匿名审稿专家的宝贵意见. 本文使用了美国阿贡国家实验室先进光子源(Argonne National Laboratory's Advanced Photon Source)的资源(DE-AC02-06CH11357).

参考文献

- Kruth J P, Leu M C, Nakagawa T. Progress in additive manufacturing and rapid prototyping. *CIRP Ann*, 1998, 47: 525–540
- Campbell I, Bourell D, Gibson I. Additive manufacturing: Rapid prototyping comes of age. *Rapid Prototyping J*, 2012, 18: 255–258
- International Organization for Standardization. ISO/ASTM 52900:2021. Additive Manufacturing—General Principles—Fundamentals and Vocabulary. 2021
- Sames W J, List F A, Pannala S, et al. The metallurgy and processing science of metal additive manufacturing. *Int Mater Rev*, 2016, 61: 315–360
- Gruber S, Grunert C, Riede M, et al. Comparison of dimensional accuracy and tolerances of powder bed based and nozzle based additive manufacturing processes. *J Laser Appl*, 2020, 32: 032016
- Kruth J P, Froyen L, Van Vaerenbergh J, et al. Selective laser melting of iron-based powder. *J Mater Process Technol*, 2004, 149: 616–622
- Yap C Y, Chua C K, Dong Z L, et al. Review of selective laser melting: Materials and applications. *Appl Phys Rev*, 2015, 2: 041101
- Yan Y N, Zhang R J, Lin F, et al. The development and trends of rapid manufacturing technologies (in Chinese). *Electromachining Mould*, 2007, (S1): 25–29 [颜永年, 张人佳, 林峰, 等. 快速制造技术的发展道路与发展趋势. *电加工与模具*, 2007, (S1): 25–29]
- Lu B H, Li D C. Development of the additive manufacturing (3D printing) technology (in Chinese). *Machine Build Automat*, 2013, 42: 1–4 [卢秉恒, 李涤尘. 增材制造(3D打印)技术发展. *机械制造与自动化*, 2013, 42: 1–4]
- Lin X, Huang W D. High performance metal additive manufacturing technology applied in aviation field (in Chinese). *Mater China*, 2015, 34: 684–688 [林鑫, 黄卫东. 应用于航空领域的金属高性能增材制造技术. *中国材料进展*, 2015, 34: 684–688]
- Gu D D, Zhang H M, Chen H Y, et al. Laser additive manufacturing of high-performance metallic aerospace components (in Chinese). *Chin J Lasers*, 2020, 47: 0500002 [顾冬冬, 张红梅, 陈洪宇, 等. 航空航天高性能金属材料构件激光增材制造. *中国激光*, 2020, 47: 0500002]
- Gu D, Shi X, Poprawe R, et al. Material-structure-performance integrated laser-metal additive manufacturing. *Science*, 2021, 372: eabg1487
- King W E, Anderson A T, Ferencz R M, et al. Laser powder bed fusion additive manufacturing of metals: physics, computational, and materials challenges. *Appl Phys Rev*, 2015, 2: 041304
- MacDonald E, Wicker R. Multiprocess 3D printing for increasing component functionality. *Science*, 2016, 353: aaf2093
- Wang H M. Materials' fundamental issues of laser additive manufacturing for high-performance large metallic components (in Chinese). *Acta Aeronaut Astronaut Sin*, 2014, 35: 2690–2698 [王华明. 高性能大型金属构件激光增材制造: 若干材料基础问题. *航空学报*, 2014, 35: 2690–2698]
- Zhang X J, Tang S Y, Zhao H Y, et al. Research status and key technologies of 3D printing (in Chinese). *J Mater Eng*, 2016, 44: 122–128 [张学军, 唐思熠, 肇恒跃, 等. 3D 打印技术研究现状和关键技术. *材料工程*, 2016, 44: 122–128]
- Yang Y Q, Chen J, Song C H, et al. Current status and progress on technology of selective laser melting of metal parts (in Chinese). *Laser Optoelectron Prog*, 2018, 55: 9–21 [杨永强, 陈杰, 宋长辉, 等. 金属零件激光选区熔化技术的现状及进展. *激光与光电子学进展*, 2018, 55: 9–21]
- Liu S, Shin Y C. Additive manufacturing of Ti6Al4V alloy: A review. *Mater Des*, 2019, 164: 107552
- King W E, Barth H D, Castillo V M, et al. Observation of keyhole-mode laser melting in laser powder-bed fusion additive manufacturing. *J Mater Process Technol*, 2014, 214: 2915–2925
- Ye J, Khairallah S A, Rubenchik A M, et al. Energy coupling mechanisms and scaling behavior associated with laser powder bed fusion additive manufacturing. *Adv Eng Mater*, 2019, 21: 1900185
- Das S. Physical aspects of process control in selective laser sintering of metals. *Adv Eng Mater*, 2003, 5: 701–711
- Khairallah S A, Anderson A T, Rubenchik A, et al. Laser powder-bed fusion additive manufacturing: Physics of complex melt flow and formation mechanisms of pores, spatter, and denudation zones. *Acta Mater*, 2016, 108: 36–45
- Zhao C, Fezzaa K, Cunningham R W, et al. Real-time monitoring of laser powder bed fusion process using high-speed X-ray imaging and

- diffraction. *Sci Rep*, 2017, 7: 3602
- 24 Zhao C, Parab N D, Li X, et al. Critical instability at moving keyhole tip generates porosity in laser melting. *Science*, 2020, 370: 1080–1086
 - 25 Matthews M J, Guss G, Khairallah S A, et al. Denudation of metal powder layers in laser powder bed fusion processes. *Acta Mater*, 2016, 114: 33–42
 - 26 Parab N D, Zhao C, Cunningham R, et al. Ultrafast X-ray imaging of laser-metal additive manufacturing processes. *J Synchrotron Rad*, 2018, 25: 1467–1477
 - 27 Bidare P, Bitharas I, Ward R M, et al. Fluid and particle dynamics in laser powder bed fusion. *Acta Mater*, 2018, 142: 107–120
 - 28 Simonds B J, Sowards J, Hadler J, et al. Time-resolved absorptance and melt pool dynamics during intense laser irradiation of a metal. *Phys Rev Appl*, 2018, 10: 044061
 - 29 Hooper P A. Melt pool temperature and cooling rates in laser powder bed fusion. *Addit Manuf*, 2018, 22: 548–559
 - 30 Gillespie J, Yeoh W Y, Zhao C, et al. *In situ* characterization of laser-generated melt pools using synchronized ultrasound and high-speed X-ray imaging. *J Acoust Soc Am*, 2021, 150: 2409–2420
 - 31 Zhang M J, Chen G Y, Zhou Y, et al. Observation of spatter formation mechanisms in high-power fiber laser welding of thick plate. *Appl Surf Sci*, 2013, 280: 868–875
 - 32 Zhang Y, Lin Q, Yin X, et al. Experimental research on the dynamic behaviors of the keyhole and molten pool in laser deep-penetration welding. *J Phys D-Appl Phys*, 2018, 51: 145602
 - 33 Yin J, Zhang W, Ke L, et al. Vaporization of alloying elements and explosion behavior during laser powder bed fusion of Cu-10Zn alloy. *Int J Mach Tools Manuf*, 2021, 161: 103686
 - 34 Feng W, Mao Z, Yang Y, et al. Online defect detection method and system based on similarity of the temperature field in the melt pool. *Addit Manuf*, 2022, 54: 102760
 - 35 Ly S, Rubenchik A M, Khairallah S A, et al. Metal vapor micro-jet controls material redistribution in laser powder bed fusion additive manufacturing. *Sci Rep*, 2017, 7: 4085
 - 36 Fabbro R, Chouf K. Keyhole modeling during laser welding. *J Appl Phys*, 2000, 87: 4075–4083
 - 37 Cunningham R, Zhao C, Parab N, et al. Keyhole threshold and morphology in laser melting revealed by ultrahigh-speed X-ray imaging. *Science*, 2019, 363: 849–852
 - 38 Zhao C, Guo Q, Li X, et al. Bulk-explosion-induced metal spattering during laser processing. *Phys Rev X*, 2019, 9: 021052
 - 39 Criales L E, Arisoy Y M, Lane B, et al. Laser powder bed fusion of nickel alloy 625: Experimental investigations of effects of process parameters on melt pool size and shape with spatter analysis. *Int J Mach Tools Manuf*, 2017, 121: 22–36
 - 40 Heigel J C, Lane B M. Measurement of the melt pool length during single scan tracks in a commercial laser powder bed fusion process. *J Manuf Sci Eng*, 2018, 140: 051012
 - 41 Gould B, Wolff S, Parab N, et al. *In situ* analysis of laser powder bed fusion using simultaneous high-speed infrared and X-ray imaging. *JOM*, 2021, 73: 201–211
 - 42 Matsunawa A, Kim J D, Seto N, et al. Dynamics of keyhole and molten pool in laser welding. *J Laser Appl*, 1998, 10: 247–254
 - 43 Nakamura H, Kawahito Y, Nishimoto K, et al. Elucidation of melt flows and spatter formation mechanisms during high power laser welding of pure titanium. *J Laser Appl*, 2015, 27: 032012
 - 44 Rieder H, Dillhöfer A, Spies M, et al. Ultrasonic online monitoring of additive manufacturing processes based on selective laser melting. *AIP Conf Proc*, 2015, 1650: 184–191
 - 45 Shevchik S, Le-Quang T, Meylan B, et al. Supervised deep learning for real-time quality monitoring of laser welding with X-ray radiographic guidance. *Sci Rep*, 2020, 10: 3389
 - 46 Oh S A, Lim R E, Aroh J W, et al. High speed synchrotron X-ray diffraction experiments resolve microstructure and phase transformation in laser processed Ti-6Al-4V. *Mater Res Lett*, 2021, 9: 429–436
 - 47 Martin A A, Caltà N P, Khairallah S A, et al. Dynamics of pore formation during laser powder bed fusion additive manufacturing. *Nat Commun*, 2019, 10: 1987
 - 48 Khairallah S A, Martin A A, Lee J R I, et al. Controlling interdependent meso-nanosecond dynamics and defect generation in metal 3D printing. *Science*, 2020, 368: 660–665
 - 49 Leung C L A, Marussi S, Atwood R C, et al. *In situ* X-ray imaging of defect and molten pool dynamics in laser additive manufacturing. *Nat Commun*, 2018, 9: 1355
 - 50 Aucott L, Dong H, Mirihanage W, et al. Revealing internal flow behaviour in arc welding and additive manufacturing of metals. *Nat Commun*, 2018, 9: 5414
 - 51 Huang Y, Fleming T G, Clark S J, et al. Keyhole fluctuation and pore formation mechanisms during laser powder bed fusion additive manufacturing. *Nat Commun*, 2022, 13: 1170

- 52 Calta N P, Wang J, Kiss A M, et al. An instrument for *in situ* time-resolved X-ray imaging and diffraction of laser powder bed fusion additive manufacturing processes. *Rev Sci Instrum*, 2018, 89: 055101
- 53 Thampy V, Fong A Y, Calta N P, et al. Subsurface cooling rates and microstructural response during laser based metal additive manufacturing. *Sci Rep*, 2020, 10: 1981
- 54 Martin A A, Wang J, DePond P J, et al. A laser powder bed fusion system for operando synchrotron X-ray imaging and correlative diagnostic experiments at the Stanford Synchrotron Radiation Lightsource. *Rev Sci Instrum*, 2022, 93: 043702
- 55 Sinclair L, Leung C L A, Marussi S, et al. *In situ* radiographic and *ex situ* tomographic analysis of pore interactions during multilayer builds in laser powder bed fusion. *Addit Manuf*, 2020, 36: 101512
- 56 Heider A, Sollinger J, Abt F, et al. High-speed X-ray analysis of spatter formation in laser welding of copper. *Phys Procedia*, 2013, 41: 112–118
- 57 Uhlmann E, Krohmer E, Schmeiser F, et al. A laser powder bed fusion system for *in situ* X-ray diffraction with high-energy synchrotron radiation. *Rev Sci Instrum*, 2020, 91: 075104
- 58 Epp J, Dong J, Meyer H, et al. Analysis of cyclic phase transformations during additive manufacturing of hardenable tool steel by *in-situ* X-ray diffraction experiments. *Scripta Mater*, 2020, 177: 27–31
- 59 Sato Y, Tsukamoto M, Shobu T, et al. *In situ* X-ray observations of pure-copper layer formation with blue direct diode lasers. *Appl Surf Sci*, 2019, 480: 861–867
- 60 Kenel C, Grolimund D, Li X, et al. *In situ* investigation of phase transformations in Ti-6Al-4V under additive manufacturing conditions combining laser melting and high-speed micro-X-ray diffraction. *Sci Rep*, 2017, 7: 16358
- 61 Hocine S, Van Swygenhoven H, Van Petegem S, et al. Operando X-ray diffraction during laser 3D printing. *Mater Today*, 2020, 34: 30–40
- 62 Grasso M, Demir A G, Previtali B, et al. *In situ* monitoring of selective laser melting of zinc powder via infrared imaging of the process plume. *Robot Comput-Integr Manuf*, 2018, 49: 229–239
- 63 Ruan X Q, Lin X, Huang C P, et al. Ultrasonic nondestructive testing of hole type defects in laser solid forming TC4 alloy (in Chinese). *Chin J Lasers*, 2015, 42: 1203001 [阮雪茜, 林鑫, 黄春平, 等. TC4 合金激光立体成形孔洞类缺陷的超声检测. *中国激光*, 2015, 42: 1203001]
- 64 Wu S B, Dou W H, Yang Y Q, et al. Research progress of inspection technology for addition manufacturing of SLM metal (in Chinese). *J Netsh Form Eng*, 2019, 11: 37–50 [吴世彪, 窦文豪, 杨永强, 等. 面向激光选区熔化金属增材制造的检测技术研究进展. *精密成形工程*, 2019, 11: 37–50]
- 65 He W, Shi W, Li J, et al. *In-situ* monitoring and deformation characterization by optical techniques; part I: Laser-aided direct metal deposition for additive manufacturing. *Opt Lasers Eng*, 2019, 122: 74–88
- 66 Wang L, Zhang Y, Chia H Y, et al. Mechanism of keyhole pore formation in metal additive manufacturing. *npj Comput Mater*, 2022, 8: 22
- 67 Gong H, Rafi K, Gu H, et al. Analysis of defect generation in Ti-6Al-4V parts made using powder bed fusion additive manufacturing processes. *Addit Manuf*, 2014, 1: 87–98
- 68 Knapp G L, Mukherjee T, Zuback J S, et al. Building blocks for a digital twin of additive manufacturing. *Acta Mater*, 2017, 135: 390–399
- 69 Bobel A, Hector Jr. L G, Chelladurai I, et al. *In situ* synchrotron X-ray imaging of 4140 steel laser powder bed fusion. *Materialia*, 2019, 6: 100306
- 70 Miyagi M, Kawahito Y, Wang H, et al. X-ray phase contrast observation of solidification and hot crack propagation in laser spot welding of aluminum alloy. *Opt Express*, 2018, 26: 22626–22636
- 71 Parab N D, Barnes J E, Zhao C, et al. Real time observation of binder jetting printing process using high-speed X-ray imaging. *Sci Rep*, 2019, 9: 2499
- 72 Fezzaa K, Wang Y. Ultrafast X-ray phase-contrast imaging of the initial coalescence phase of two water droplets. *Phys Rev Lett*, 2008, 100: 104501
- 73 Wang Y, Liu X, Im K S, et al. Ultrafast X-ray study of dense-liquid-jet flow dynamics using structure-tracking velocimetry. *Nat Phys*, 2008, 4: 305–309
- 74 Wang Y D, Zhang Z W, Li S L, et al. Application of synchrotron-based high-energy X-ray diffraction in materials research (in Chinese). *Mater China*, 2017, 36: 168–174 [王沿东, 张哲维, 李时磊, 等. 同步辐射高能 X 射线衍射在材料研究中的应用进展. *中国材料进展*, 2017, 36: 168–174]
- 75 Snigirev A, Snigireva I, Kohn V, et al. On the possibilities of X-ray phase contrast microimaging by coherent high-energy synchrotron radiation. *Rev Sci Instrum*, 1995, 66: 5486–5492
- 76 Kastengren A, Powell C F. Synchrotron X-ray techniques for fluid dynamics. *Exp Fluids*, 2014, 55: 1686
- 77 Wolff S J, Wu H, Parab N, et al. *In-situ* high-speed X-ray imaging of piezo-driven directed energy deposition additive manufacturing. *Sci Rep*, 2019, 9: 962
- 78 Chen Y, Clark S J, Leung C L A, et al. *In-situ* synchrotron imaging of keyhole mode multi-layer laser powder bed fusion additive manufacturing. *Appl Mater Today*, 2020, 20: 100650
- 79 Jiao Y, Xu G, Cui X H, et al. The HEPS project. *J Synchrotron Rad*, 2018, 25: 1611–1618

- 80 Lu W, Friedrich B, Noll T, et al. Development of a hard X-ray split-and-delay line and performance simulations for two-color pump-probe experiments at the European XFEL. *Rev Sci Instrum*, 2018, 89: 063121
- 81 Philipp H T, Tate M W, Shanks K S, et al. Practical considerations for high-speed X-ray pixel array detectors and X-ray sensing materials. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect A-Accel Spectrom Dect Assoc Equip*, 2019, 925: 18–23
- 82 Martin J H, Yahata B D, Hundley J M, et al. 3D printing of high-strength aluminium alloys. *Nature*, 2017, 549: 365–369
- 83 Zhang D, Qiu D, Gibson M A, et al. Additive manufacturing of ultrafine-grained high-strength titanium alloys. *Nature*, 2019, 576: 91–95
- 84 Kürnsteiner P, Wilms M B, Weisheit A, et al. High-strength Damascus steel by additive manufacturing. *Nature*, 2020, 582: 515–519
- 85 Todaro C J, Easton M A, Qiu D, et al. Grain structure control during metal 3D printing by high-intensity ultrasound. *Nat Commun*, 2020, 11: 142
- 86 Leung C L A, Marussi S, Towrie M, et al. The effect of powder oxidation on defect formation in laser additive manufacturing. *Acta Mater*, 2019, 166: 294–305
- 87 Sanaei N, Fatemi A. Defects in additive manufactured metals and their effect on fatigue performance: A state-of-the-art review. *Prog Mater Sci*, 2020, 117: 100724
- 88 Farshidianfar M H, Khajepour A, Gerlich A P. Effect of real-time cooling rate on microstructure in laser additive manufacturing. *J Mater Process Technol*, 2016, 231: 468–478
- 89 Heigel J C, Lane B M, Levine L E. *In situ* measurements of melt-pool length and cooling rate during 3D builds of the metal AM-bench artifacts. *Integr Mater Manuf Innov*, 2020, 9: 31–53
- 90 Withers P J, Bhadeshia H K D H. Residual stress. Part 1—Measurement techniques. *Mater Sci Technol*, 2001, 17: 355–365
- 91 Sochalski-Kolbus L M, Payzant E A, Cornwell P A, et al. Comparison of residual stresses in Inconel 718 simple parts made by electron beam melting and direct laser metal sintering. *Metall Mat Trans A*, 2015, 46: 1419–1432
- 92 Zhu B, Wang Y, Dluhoš J, et al. A novel pathway for multiscale high-resolution time-resolved residual stress evaluation of laser-welded Eurofer97. *Sci Adv*, 2022, 8: eabl4592
- 93 DebRoy T, Wei H L, Zuback J S, et al. Additive manufacturing of metallic components—Process, structure and properties. *Prog Mater Sci*, 2018, 92: 112–224
- 94 Mostafaei A, Zhao C, He Y, et al. Defects and anomalies in powder bed fusion metal additive manufacturing. *Curr Opin Solid State Mater Sci*, 2022, 26: 100974
- 95 Bayat M, Thanki A, Mohanty S, et al. Keyhole-induced porosities in laser-based powder bed fusion (L-PBF) of Ti6Al4V: High-fidelity modelling and experimental validation. *Addit Manuf*, 2019, 30: 100835
- 96 Bertoli U S, Wolfer A J, Matthews M J, et al. On the limitations of volumetric energy density as a design parameter for selective laser melting. *Mater Des*, 2017, 113: 331–340
- 97 Low D K Y, Li L, Byrd P J. Spatter prevention during the laser drilling of selected aerospace materials. *J Mater Process Technol*, 2003, 139: 71–76
- 98 Selva B, Miralles V, Cantat I, et al. Thermocapillary actuation by optimized resistor pattern: Bubbles and droplets displacing, switching and trapping. *Lab Chip*, 2010, 10: 1835–1840
- 99 Clarke A J. Designer alloy enables 3D printing of fine-grained metals. *Nature*, 2019, 576: 41–42
- 100 Elmer J W, Palmer T A, Babu S S, et al. Phase transformation dynamics during welding of Ti-6Al-4V. *J Appl Phys*, 2004, 95: 8327–8339
- 101 Zhou T, Wang H, Connolley T, et al. Development of an X-ray imaging system to prevent scintillator degradation for white synchrotron radiation. *J Synchrotron Rad*, 2018, 25: 801–807
- 102 Dinda G P, Dasgupta A K, Mazumder J. Laser aided direct metal deposition of Inconel 625 superalloy: Microstructural evolution and thermal stability. *Mater Sci Eng-A*, 2009, 509: 98–104
- 103 Mower T M, Long M J. Mechanical behavior of additive manufactured, powder-bed laser-fused materials. *Mater Sci Eng-A*, 2016, 651: 198–213
- 104 Guo Q, Zhao C, Escano L I, et al. Transient dynamics of powder spattering in laser powder bed fusion additive manufacturing process revealed by *in-situ* high-speed high-energy X-ray imaging. *Acta Mater*, 2018, 151: 169–180
- 105 Li X, Zhao C, Sun T, et al. Revealing transient powder-gas interaction in laser powder bed fusion process through multi-physics modeling and high-speed synchrotron X-ray imaging. *Addit Manuf*, 2020, 35: 101362
- 106 Aboulkhair N T, Everitt N M, Ashcroft I, et al. Reducing porosity in AlSi10Mg parts processed by selective laser melting. *Addit Manuf*, 2014, 1: 77–86
- 107 Bitharas I, Parab N, Zhao C, et al. The interplay between vapour, liquid, and solid phases in laser powder bed fusion. *Nat Commun*, 2022, 13: 2959
- 108 Bauereiß A, Scharowsky T, Körner C. Defect generation and propagation mechanism during additive manufacturing by selective beam melting. *J Mater Process Technol*, 2014, 214: 2522–2528
- 109 Buchbinder D, Meiners W, Pirch N, et al. Investigation on reducing distortion by preheating during manufacture of aluminum components using

- selective laser melting. *J Laser Appl*, 2014, 26: 012004
- 110 Zhong C, Gasser A, Schopphoven T, et al. Experimental study of porosity reduction in high deposition-rate laser material deposition. *Opt Laser Technol*, 2015, 75: 87–92
- 111 Casati R, Lemke J, Vedani M. Microstructure and fracture behavior of 316L austenitic stainless steel produced by selective laser melting. *J Mater Sci Technol*, 2016, 32: 738–744
- 112 Liverani E, Toschi S, Ceschini L, et al. Effect of selective laser melting (SLM) process parameters on microstructure and mechanical properties of 316L austenitic stainless steel. *J Mater Process Technol*, 2017, 249: 255–263
- 113 Aleshin N P, Murashov V V, Evgenov A G, et al. The classification of flaws of metal materials synthesized by the selective laser melting method and the capabilities of nondestructive testing methods for their detection. *Russ J Nondestruct Test*, 2016, 52: 38–43
- 114 Wang T, Zhu Y Y, Zhang S Q, et al. Grain morphology evolution behavior of titanium alloy components during laser melting deposition additive manufacturing. *J Alloys Compd*, 2015, 632: 505–513
- 115 Yuan K, Guo W, Li P, et al. Influence of process parameters and heat treatments on the microstructures and dynamic mechanical behaviors of Inconel 718 superalloy manufactured by laser metal deposition. *Mater Sci Eng-A*, 2018, 721: 215–225
- 116 Wang D, Ou Y H, Dou W H, et al. Research progress on spatter behavior in laser powder bed fusion (in Chinese). *Chin J Lasers*, 2020, 47: 0900001 [王迪, 欧远辉, 窦文豪, 等. 粉末床激光熔融过程中飞溅行为的研究进展. *中国激光*, 2020, 47: 0900001]
- 117 Liang J, Liu Y, Li J, et al. Epitaxial growth and oxidation behavior of an overlay coating on a Ni-base single-crystal superalloy by laser cladding. *J Mater Sci Technol*, 2019, 35: 344–350
- 118 Simonds B J, Tanner J, Artusio-Glimpse A, et al. The causal relationship between melt pool geometry and energy absorption measured in real time during laser-based manufacturing. *Appl Mater Today*, 2021, 23: 101049
- 119 Yang T, Jin Y, Squires B, et al. *In-situ* monitoring and *ex-situ* elasticity mapping of laser induced metal melting pool using ultrasound: Numerical and experimental approaches. *J Manuf Processes*, 2021, 71: 178–186
- 120 Kouraytem N, Li X, Cunningham R, et al. Effect of laser-matter interaction on molten pool flow and keyhole dynamics. *Phys Rev Appl*, 2019, 11: 064054
- 121 Wang L, Zhang Y, Yan W. Evaporation model for keyhole dynamics during additive manufacturing of metal. *Phys Rev Appl*, 2020, 14: 064039
- 122 Gan Z, Kafka O L, Parab N, et al. Universal scaling laws of keyhole stability and porosity in 3D printing of metals. *Nat Commun*, 2021, 12: 2379

Summary for “金属激光增材制造微观结构和缺陷原位实时监测”

***Operando* monitoring microstructures and defects in laser fusion additive manufacturing of metals**

Cang Zhao^{1,2*}, Yuanqi Yang^{1,2}, Bo Shi^{1,2}, Wenjie Shao^{1,2} & Shuailei Chen^{1,2}

¹ Department of Mechanical Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China;

² Key Laboratory for Advanced Materials Processing Technology, Ministry of Education, Tsinghua University, Beijing 100084, China

* Corresponding author, E-mail: cangzhao@tsinghua.edu.cn

Laser fusion additive manufacturing of metals has been growing tremendously over the past decade. Despite its unrivaled capability to directly fabricate complex geometries, the accuracy, repeatability, and reliability of the build remain a major concern. From the micro perspective, it is the unfavorable microstructures and defects/anomalies that deteriorate the service performances such as fatigue life and corrosion resistance. The microstructures here involve not only melt pool and keyhole but also grain morphology and size, crystal orientation, interface structure, composition homogeneity, phase stability, etc. The defects/anomalies mainly include porosity, balling, lack of fusion, spattering, element loss, oxidation, micro residual stress and deformation, microcracking, and rough surface. Accurate detection and characterization of these features are critical for their understanding and control. Traditionally, we use optical microscope, electron microscope, X-ray tomography and diffraction, and so forth, to perform postmortem analysis and track the thermal traces the local material has experienced. However, such information and evidence are typically static and limited. This poses difficulties in recreating and interpreting the microstructural formation.

In this review, we summarize recent progress on *in situ/operando* monitoring the laser fusion additive manufacturing of metals. It mainly covers high-speed visible light and thermal imaging, laboratory X-ray imaging, ultrasonic measurement, and high-speed synchrotron X-ray imaging and diffraction. Beyond traditional postmortem characterizations, the *in situ/operando* techniques have demonstrated the capability to capture the transient and dynamic formation and evolution processes of various microstructures and defects. They are revolutionizing the research mode in the field of metal additive manufacturing, from trial and error to mechanism oriented. In the former, we continue to optimize the objective function (e.g., grain morphology and size) until it arrives at a satisfactory solution, largely based on limited experience and knowledge and costly iterations. In the latter, we quest for the ultimate solution to manufacturing defect-free and perfect structures through direct exploration of the physical origins of the aforementioned features. Among the various techniques, we address high-speed synchrotron X-ray imaging and diffraction. It is an emerging approach in this field and is more suitable to monitor the internal microstructural evolution of metals, e.g., melt pool and keyhole dynamics, pore formation, cracking, rapid solidification, and phase transformation, because of the micrometer spatial resolution, sub-nanosecond temporal resolution, megahertz frame rate, and millimeter penetration capacity. Nevertheless, other techniques like high-speed visible light and thermal imaging have irreplaceable advantages and application scenarios. They can provide complementary information (e.g., thermal distribution on the melt pool surface, vapor plume dynamics, and three-dimensional spatter morphologies) for comprehensive understanding of the fundamental mechanisms in laser melting. Looking ahead to the next decade, the integration of multiple *in situ/operando* techniques and the translation among the resultant multi-dimensional signals, as well as big data computing and high precision modeling, will bridge understanding of mechanisms on the microscale and tailoring of properties on the macroscale. This will promote sustainable growth of the additive manufacturing industry.

metal additive manufacturing, microstructure, defect, *in situ*, synchrotron radiation, X-ray imaging and diffraction

doi: [10.1360/TB-2022-0439](https://doi.org/10.1360/TB-2022-0439)