应变水平对锆合金动载下塑性变形机制的影响

郭亚昆¹,帅茂兵¹,邹东利²,肖大武²,何立峰²

(1. 表面物理与化学重点实验室,四川 江油 621908)
(2. 中国工程物理研究院,四川 江油 621907)

摘 要:基于实验设计研究了应变参数对锆合金动载下塑性变形机制的影响。通过控制应变速率,采用应变限位环的 方法实现了锆合金高应变速率下应变参数的单一分离,应变速率为 2300 s⁻¹时,获得了 4 个不同的应变水平:0.11、0.21、 0.30、0.33。基于锆合金高应变速率不同应变下微观组织的表征,预测了应变参数对锆合金动载下塑性变形过程的影响。 结果表明:形变带和转变带是锆合金不同应变阶段塑性变形的重要方式,形变带内部由严重变形的晶粒组成,而转变 带内部主要由 100~300 nm 的细小等轴晶粒组成。在变形初始阶段, 锆合金变形以柱面滑移和锥面滑移为主,以孪生为 辅;随着应变的增加,位错持续增殖,位错的塞积导致应力增加,直至最大抗压强度;当应变达到一个临界值时,形成 形变带;随应变继续增加,形变带发生动态再结晶,演化为转变带;应变继续增加,便会在剪切带内部诱发微空洞、微 裂纹,直至材料断裂。

应变是材料本构方程中最重要的一个试验参数, 应变大小直接决定着材料力学性能的变化趋势。在变 形的初始阶段,应变硬化起着主导作用,即随着应变 的增加,材料的流变应力逐渐增加;当应变达到一定 数值后,应变硬化和由塑性变形引起的热软化之间达 到一个动态平衡,此时流变应力保持不变;随着应变 继续增加,当热软化起主导作用时,流变应力将逐渐 减小。研究表明,应变对锆合金的塑性变形方式也有 显著的影响。Philippe 等人^[1]系统研究了核级锆不同轧 制过程中的塑性变形行为: 当变形量小于 20%时, 塑 性变形机制为孪生、柱面滑移和少量基面滑移;变形 量为 20%~50%时, 变形机制以交滑移为主; 变形量大 于 50% 后, 基本无孪生变形, 塑性变形仅靠滑移完成。 目前,有关锆合金准静态载荷下塑性变形行为的研究 已有大量报道^[2-5],但高应变速率下锆合金塑性变形机 制的研究报道较少。经检索发现,俄罗斯科学院学者 Taluts 较早地研究了锆合金在球形应力波作用下的塑 性变形行为,并发表了一系列文章[6-9]。结果表明,冲 击载荷下绝热剪切带成为锆合金塑性变形的重要方 式。美国加州大学 Meyers 教授^[10]研究了纯锆在分离 式霍普金森压杆 (SHPB) 撞击下的塑性变形行为。结 果表明,剪切带和位错滑移是纯锆动态载荷下塑性变 文章编号: 1002-185X(2017)06-1584-06

形的主要方式。国内较早研究锆合金动态塑性变形的 学者是中物院的肖大武博士^[11-13]。肖大武在其博士论 文中详细地阐述了纯锆的动态力学性能以及本构关 系。通过显微组织观察表明,纯锆在动态载荷下形成 了变形孪晶和绝热剪切带,同时绝热剪切带以形变带 为主。虽然国内外有关锆合金高应变速率下塑性变形 行为的研究已有部分报道,但研究内容侧重于力学性 能以及本构关系,对显微组织的观察和论述较少,特 别是在高应变速率载荷下单一试验参数对锆合金塑性 变形机制的影响鲜有报道。本研究通过控制应变速率, 采用应变限位环的方法实现了高应变速率下应变参数 的单一分离,随后通过变形后显微组织的表征,揭示 了应变参数对锆合金塑性变形机制的影响规律。

1 实 验

选用 4.6 mm 厚的退火态 Zr-4 合金板材作为实验材料, 锆合金板材原始组织形貌如图 1 所示。该合金主要由细小等轴的晶粒组成, 晶粒尺寸 10~20 μm。

动态压缩实验在中物院材料研究所的 SHPB 装置 上实施,试样尺寸为 *Φ*6 mm×4.6 mm。

金相观察在激光共聚焦显微镜(CLSM)上进行。 将柱形样品沿横断面切割、研磨、抛光后,用金相腐

收稿日期: 2016-05-28

基金项目:国家自然科学基金(51401187)

作者简介: 郭亚昆, 女, 1981年生, 博士, 表面物理与化学重点实验室, 四川 江油 621908, 电话: 0816-3626742, E-mail: yakunguo@126.com





Fig.1 OM image of original microstructure of zirconium alloy plate

蚀液进行腐蚀,金相腐蚀液的配比: 45 mL H_2O + 45 mL HNO_3 + 10 mL HF,腐蚀时间约 40 s。将制备好的 金相试样在 Sirion 型扫描电镜(SEM)上进行观察, 扫描电镜的加速电压设置为 15 kV。

电子背散射衍射(EBSD)标定在 FEI Helios NanoLab 600i型双束系统上进行,标定时加速电压设置为 25 kV, 电流设置为 2.7 nA。EBSD 制样过程包括研磨、机械抛光 和电解抛光几个步骤,详细信息见文献[14]。

透射电镜(TEM)观察在 F20 型电镜上进行,加速电压为 200 kV。透射样品的制备采用双束聚焦离子束系统(FEI Helios NanoLab DualBeam FIB)进行定点切割、减薄,在样品上选择特征区域进行切割。切割使用的离子源为液态 Ga⁺,切割时加速电压设置为 30 kV,电流设置为 21 nA。将切割好的样品采用机械手转移至铜网上,随后减薄至可进行透射观察的薄度,最终减薄样品的试验参数设置为电压 5 kV,电流 40 pA。

结果与讨论

2

图 2 为锆合金在应变速率 2300 s⁻¹下采用应变限 位环获得的 4 个不同应变水平的应力-应变曲线及其 试样的宏观形貌。从图 2a 中可见, 4 条应力-应变曲线 前端部分基本重合,暗示样品在应变速率 2300 s⁻¹下 动态变形时具有较好的可重复性。从应力-应变曲线可 见,4条曲线变化趋势基本一致,即弹性变形后,随 着应变的增加而屈服,随后发生应变硬化阶段,达到 最大抗压强度后,随着应变的继续增加而应力降低, 最后至承载能力完全丧失。应变为 0.11 时,试样位于 动态屈服后应变硬化阶段;应变为 0.21 时,试样刚好 处于抗压强度后的临界阶段;应变为0.30时,试样位 于应力水平降低的后期阶段;应变为0.33时,试样处 于承载能力完全丧失的阶段。因此,4个应变水平基 本上反映了锆合金在高应变速率载荷下塑性变形时所 经历的典型阶段,也就是说4个应变水平能够用来描 述锆合金动态塑性变形过程。

动态压缩后试样的宏观形貌如图 2b~2e 所示。应变为 0.11 时,试样基本保持完整,没有应变局部化和宏观裂纹的产生,说明此阶段试样以均匀塑性变形为主; 应变增加至 0.21 时,试样沿 45°剪切方向上形成了明显的应变局部化,且根据其形貌特征可确定为形变 带^[15],而形变带局部区域内伴有微孔洞的出现。结合 应力-应变曲线进行分析,应变为 0.21 时在应力-应变 曲线上体现为超过最大抗压强度,处于应力降低的临 界阶段,说明形变带的形成和发展是导致锆合金承载 能力降低的重要原因;应变为 0.30 时,试样沿 45°剪 切方向上出现了微裂纹和转变带共存的现象,而此时 在应力-应变曲线上表现为材料承载能力降低的后期 阶段,说明锆合金承载能力的完全丧失主要归结于转 变带和微裂纹的形成和发展;应变为 0.33 时,试样沿



图 2 错合金在应变速率 2300 s⁻¹不同应变水平下获得的应力-应变曲线以及试样的宏观形貌

Fig.2 Stress-strain curves (a) and macro-views of zirconium alloy deformed at strain rate of 2300 s⁻¹ under different strains: (b) 0.11, (c) 0.21, (d) 0.30, and (e) 0.33

应变为 0.21 时, 锆合金的主要塑性变形方式为形 变带,形变带显微组织表征结果如图 3 所示。图 3a 表明,形变带沿 45°剪切方向贯穿整个样品,没有发 现转变带存在的痕迹,暗示应变为0.21是锆合金在应 变速率 2300 s⁻¹ 下形变带形成的临界值。从端角到基 体内部逐步观察形变带,发现样品端角处形变带应变 局部化程度较高,而样品内部应变局部化程度较低, 说明形变带起源于试样端角,然后沿着最大剪切应力 方向向试样内部扩展,直至贯通。试样端角处形变带 内部可观察到少量微裂纹的存在,且裂纹尖端方向与 形变带扩展方向一致,说明形变带是裂纹形核和扩展 择优选择位置。从图 3b 可以看出,靠近形变带的区域 基体晶粒发生了较严重的扭转变形,从晶粒的长轴方 向平行于轧制方向转变为平行于剪切带扩展方向,说 明在形变带形成过程中,形变带附近基体晶粒发生了 严重的剪切变形。图 3c 为形变带附近显微组织的 EBSD 标定结果。从图中可以看出,形变带正好位于 EBSD 标定区域的中心位置,严重的塑性变形加上由 塑性变形引起的内应力造成形变带内部组织的菊池花 样质量较差,标定率降低。形变带 EBSD 标定区域的 后处理图像如图 3d 所示。由图中可见,形变带内部晶 粒发生了严重的剪切变形,部分严重变形的晶粒长径 比可高达 5, 甚至以上。取向差分析表明, 如图 3e 所 示,形变带附近及其内部小角晶界(取向差介于 2°~15°)的含量明显高于远离形变带的基体晶粒,说 明位错滑移在形变带形成过程中担当着重要的角色。 应变局部化发生前, 位错滑移和孪生是锆合金发生均 匀塑性变形的主要方式,且以位错滑移为主^[14]。当位 错滑移不能协调局部的塑性变形时,就会诱发应变局 部化形成形变带,即形变带形成前位错滑移是协调锆 合金塑性变形最重要的方式。应变局部化发生后,形 变带内部晶粒会在剪切应力的作用下发生转动,改变 了晶粒取向,使得处于硬取向的晶粒能够进一步发生 位错滑移来协调局部应变。可以确定地给出位错滑移 在形变带形成前后均起着十分重要的作用,从而导致 形变带附近晶粒内部小角晶界的含量远高于基体晶 粒。另外,研究表明^[15],剪切带的形成是严重塑性变 形和高的局部塑性温升共同作用的结果,而形变带内 部由严重变形晶粒组成的特征说明由塑性变形造成的 温升还不足以诱发动态再结晶的发生,因而研究证实, 形变带内部组织主要由高密度缺陷的严重变形晶粒组 成^[16]。

应变为 0.30 时, 锆合金动态塑性变形的内部组织 特征主要以转变带和微裂纹为主, 转变带内部组织表 征如图 4 所示。图 4a 表明, 转变带位于中心裂纹两端



图 3 结合金在应变速率 2300 s⁻¹/应变 0.21 下动态变形时形变 带的表征

Fig.3 Characterization of deformed bands in zirconium alloy under dynamic deformation at strain rate of 2300 s⁻¹ and strain of 0.21: (a) CLSM image, (b) SEM image, (c) EBSD indexed zone, (d) EBSD band contrast image, and (e) EBSD grain boundary image

尖角处,其形貌特征为白亮色,与基体之间具有明显 的分界线。进一步观察发现,部分转变带内部存在微 裂纹,且其扩展方向与转变带扩展方向一致。转变带 附近组织的 SEM 照片如图 4b 所示。图中可见,转变 带与基体之间界面明显,且其内部组织与周围基体组 织相比具有明显的差异。仔细观察发现,转变带内部 由细小等轴的晶粒组成,晶粒尺寸十分细小。转变带 内部组织标定的 EBSD 图像如图 4c 所示。图中可见, EBSD 标定区域刚好贯穿转变带,从标定结果可以看 出,转变带附近晶粒的标定率较好(标定率>85%), 而转变带内部组织的标定率急剧下降,特别是转变带 中心区域,标定率降至约30%。造成这一情况的主要 原因归结于 3 点: (1) 转变带在形成过程中内部会累 积大量的残余应力,高的残余应力导致标定率降低; (2) 转变带内部晶粒十分细小, 当晶粒尺寸小于 50 nm 时,EBSD 本身分辨率的原因导致这部分晶粒无法标 定; (3) 转变带内部组织在形成过程中会经历高温、 急冷过程,导致带内局部区域形成非稳态组织,这类 显微组织 EBSD 无法进行标定, 使得标定率降低。

从 EBSD 后处理图像(图 4d)可以初步辨别转变 带内部组织分布的情况,整体来看转变带内部组织具 有 3 个特点:(1) 晶粒十分细小且呈等轴状,晶粒属 于超细晶组织,与周围基体晶粒相比,晶粒尺寸下降



- 图 4 错合金在应变速率 2300 s⁻¹/应变 0.30 下动态变形时转变 带的表征
- Fig.4 Characterization of transformed bands in zirconium alloy under dynamic deformation at strain rate of 2300 s⁻¹ and strain of 0.30: (a) CLSM image, (b) SEM image, (c) EBSD indexed zone, (d) EBSD band contrast image, and (e) EBSD grain boundary image

了约 2 个数量级; (2) 转变带内部晶粒呈梯度分布, 即从转变带中心区域到转变带与基体界面处晶粒尺寸 分布呈梯度状, 且转变带中心区域晶粒更加细小, 这 种分布特征主要与转变带内部的温度分布有关,转变 带内部温度的梯度分布导致了转变带内部组织呈现梯 度分布的特征[17]; (3) 转变带内部晶粒之间衬度大, 暗示晶粒之间取向差较大,属于大角晶界。取向差分 析表明,如图 4e 所示,与基体晶粒中小角晶界的数量 相比,转变带内部晶粒中小角晶界的数量明显降低, 且晶粒之间由取向差大于 15° 的大角晶界组成。通过 点对点和点对原始点取向差测量表明[17],转变带内部 晶粒中累计取向差小于 5°, 而附近基体晶粒内累积取 向差甚至高于 15°, 说明转变带内部晶粒在形成过程 中大量位错结构已经湮灭,结合形变带内部组织的特 点,可以确定地给出转变带内部细小等轴晶粒的形成 是动态再结晶的结果。

为了进一步表征转变带内部组织信息,采用 TEM 进行观察,因为 TEM 的优势在于拥有更高的空间分 辨率,问题是转变带宽度有限,仅有 40~50 μm,使得 传统的 TEM 制样方式包括电解双喷和离子减薄很难 对转变带内部区域进行定点减薄,制备出合适的 TEM 样品,这是目前限制转变带内部组织观察的主要瓶 颈^[10, 15, 18]。FIB (focused ion beam) 的发展使得转变带 内部组织的精确表征成为可能,因为 FIB 可对样品实 行定点切割和减薄。本研究中采用 FIB 对转变带内部 组织进行了定点切割减薄,制备了 TEM 样品,如图 5 所示。FIB 制备 TEM 样品包括切割、转移、减薄等几 个过程,如图 5a、5b、5c 所示,制备的 TEM 样品如 图 5d 所示。图中可见 FIB 制备的 TEM 样品薄区较好, 整个切割区域均可用于 TEM 观察。FIB 制备的 TEM 样品具有三明治结构,表层由蒸镀的 Pt 层组成, Pt 层与样品之间由氧化层组成,最后为用于观察的样品 组织。对中间过渡氧化层进行观察,如图 5e 所示,氧 化层没有明显的衬度,选区电子衍射(SAED)呈光 晕状,说明氧化层为非晶组织。转变带内部组织及其 选区电子衍射如图 5f、5g 所示。图中可见,转变带内 部组织主要由细小等轴的晶粒组成,晶粒尺寸介于 100~300 nm, 晶粒内部具有一定数量的位错结构。相 应 SAED 标定表明,转变带内部组织为密排六方结构 (hcp)的 Zr 晶粒,没有发现其它结构的 Zr 晶粒或非 晶组织,这表明转变带内部组织主要由细小等轴的晶 粒组成,至于相变组织和非晶组织没能探测到,即使 存在这类非平衡组织,也只能存在于局部微小区域。 另外, SAED 呈多晶衍射环也进一步表明转变带内部 组织晶粒十分细小,且取向差较大。

转变带内部组织具有晶粒细小等轴、取向差较大、 缺陷密度较低的特点,证明其形成过程应该是动态再 结晶的结果。Meyers等人^[10]详细地计算了转变带内部 组织形成的热力学和动力学过程,认为转变带内部组 织的形成应该归功于旋转动态再结晶机制。作者已对 转变带内部塑性温升进行了评估^[18],结果发现,锆合 金动载下转变带内部温升远超过锆合金发生再结晶所 需的温度 550~580 ℃。动力学计算也表明,在此塑性 温升下,通过旋转形成大角晶界所需的时间为毫秒量 级,即在热力学和动力学上旋转动态再结晶机制能够 很好地说明转变带内部组织的形成过程。因此,有理 由认为,锆合金转变带内部细小等轴晶粒的形成是旋 转动态再结晶的结果。

基于锆合金在高应变速率载荷不同应变下微观组 织的表征,可有效预测应变参数对锆合金动载下塑性 变形过程的影响:在变形的初始阶段,锆合金以柱面 滑移和锥面滑移为主,以孪生为辅^[19];随着应变的增 加,位错持续增殖,位错与位错之间、位错与孪晶界 之间交互切割、缠结、塞积导致应力水平持续增加直 至最大抗压强度。在此过程中也会发生应变局部化, 但其发展较慢;当应变达到一个临界值时,应变局部 化会快速发展形成形变带,此时形变带成为锆合金塑 性变形的主要方式,位错滑移和孪生起着辅助的作用;



图 5 锆合金在应变速率 2300 s⁻¹/应变 0.30 下动态变形时转变 带内部组织的表征

Fig.5 Characterization of microstructure of transformed bands in zirconium alloy under dynamic deformation at strain rate of 2300 s⁻¹ and strain of 0.30: (a) ion-milling position of TEM sample, (b) TEM sample transferred by manipulator, (c) TEM sample jointing on copper net, (d) low magnified TEM image; (e) high magnified image in Fig. 5d zone E; (f) high magnified image in Fig. 5d zone F; (g) SAED pattern from zone G in Fig. 5f

随着应变继续增加,当形变带内部由塑性变形造成的 温升达到动态再结晶晶粒发生所需的临界条件时,形 变带内部严重变形和拉长的晶粒便会发生动态再结晶 形成细小等轴的晶粒,形变带便会演化为转变带,此 时转变带便成为锆合金塑性变形的主要方式,位错滑 移和孪生起着辅助作用;当应变继续增加,便会在剪 切带内部诱发微空洞、微裂纹,直至材料破坏而断裂。

3 结 论

 1)形变带和转变带是锆合金不同应变阶段塑性 变形的重要方式,且形变带可看作是转变带的初级阶段,而转变带可认为是形变带进一步发展的结果。

 2) 形变带内部以严重变形的晶粒组成,而转变带 内部主要由细小等轴的再结晶晶粒组成。转变带内部 除细小等轴的晶粒外,未发现其它类型的非平衡组织。

3) 在变形初始阶段, 锆合金变形以柱面滑移和锥面滑移为主, 以孪生为辅;随着应变的增加, 位错持续增殖, 位错的塞积导致应力增加, 直至最大抗压强度; 当应变达到一个临界值时, 形成形变带; 随应变继续增加, 形变带发生动态再结晶, 演化为转变带; 应变继续增加, 便会在剪切带内部诱发微空洞、微裂纹, 直至材料断裂。

参考文献 References

- Philippe M J, Serghat M, Houtte P V et al. Acta Metallurgica et Materialia[J], 1995, 43: 1619
- [2] Xu F, Holt R A, Daymond M R. Acta Materialia[J], 2008, 56: 3672
- [3] Gloaguen D, Berchi T, Girard E et al. Journal of Nuclear Mater[J], 2008, 374: 138
- [4] Stepanova E N, Grabovetskaya G P, Mishin T P et al. Materials Today: Proceedings[J], 2015, 2: 365
- [5] Wang Pengfei(王朋飞), Zhao Wenjin(赵文金), Chen Le(陈乐) et al. Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与 工程)[J], 2015, 44(5): 1149
- [6] Taluts N I, Dobromyslov A V, Kozlov E A. The Physics of Metals and Metallography[J], 2009, 108: 171
- [7] Taluts N I, Dobromyslov A V, Kozlov E A. International Journal Materials Research[J], 2009, 100: 362
- [8] Dobromyslov A V, Kozlov E A, Taluts N I. Journal of Physics IV[J], 2008, 10: 817
- [9] Dobromyslo A V, Kozlov E A, Taluts N I. Journal of Physics *IV*[J], 1997, 7: 963
- [10] Kad B K, Gebert J M, Perez-Prado M T et al. Acta Materialia[J], 2006, 54: 4111
- [11] Xiao Dawu(肖大武), Li Yinglei(李英雷), Hu Shisheng(胡时 胜) et al. Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材 料与工程)[J], 2008, 37(12): 2122
- [12] Xiao D W, Li Y L, Hu S S et al. Journal of Materials Science Technology[J], 2010, 26: 878
- [13] Xiao Dawu(肖大武), Li Yinglei(李英雷), Hu Shisheng(胡时胜). Chinese Journal of High Pressure Physics(高压物理学报)[J], 2009, 23: 46
- [14] Zou Dongli(邹东利), Luan Baifeng(栾伯峰), Xiao Dongping (肖东平). Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属 材料与工程)[J], 2014, 43(8): 1897
- [15] Xu Y B, Zhang J H, Bai Y L et al. Metallurgical Materials and Transaction A[J], 2008, 39: 811
- [16] Xu Y B, Zhong W L, Chen Y J et al. Materials Science and

Engineering A[J], 2001, 299: 287

[17] Wang X B. Transactions of Nonferrous Metals Society of China[J], 2006, 16(2): 333 Engineering A[J], 2012, 558: 517

- [19] Yoo M H, Agnew S R, Morris J R et al. Materials Science and Engineering A[J], 2001, 319-321: 87
- [18] Zou D L, Luan B F, Liu Q et al. Materials Science and

Influences of Strain on the Plastic Deformation Mechanism of Zirconium Alloy Subjected to Dynamic Loading

Guo Yakun¹, Shuai Maobing¹, Zou Dongli², Xiao Dawu², He Lifeng²

(1. Science and Technology on Surface Physics and Chemistry Laboratory, Jiangyou 621908, China)

(2. China Academy of Engineering Physics, Jiangyou 621907, China)

Abstract: The influence of strain on the plastic deformation mechanism of zirconium alloy subjected to dynamic loadings was investigated by the experimental design. The strain parameter of zirconium alloy subjected to dynamic loading was only separated by the strain stopping rings and the controlled strain rate, and four strain levels including 0.11, 0.21, 0.30 and 0.33 were obtained at strain rate of 2300 s^{-1} . Based on microstructural characterization of zirconium alloy under high strain rate and different strains, the plastic deformation process of zirconium alloy subjected to different strain parameters was speculated. The results show that the deformed bands and transformed bands are considered as the dominant plastic deformation mechanism of zirconium alloy at different strain stages. The deformed bands are mainly composed of the severely deformed grains, and the transformed bands mainly composed of the ultrafin e and equiaxed grains with the mean diameter of 100~300 nm are confirmed. At the initial stage, the prismatic plane and pyramidal plane slipping are proposed as the primary plastic deformation mechanism of zirconium alloy, and twinning plays an additional role. With the stain increasing, the dislocation multiplication sustains, leading to the dislocation piled up, and the strain increasing continuously, the dynamic recrystallization occurs in the deformed band, and the deformed band is formed. With the strain increasing continuously, the dynamic recrystallization occurs in the deformed band, and the deformed band is evolved into the transformed band. With strain increasing continuously, severe shear strain localization leads to the nucleation of the micro-voids and micro-cracks in the shear band, and finally the material fractures.

Key words: zirconium alloy; strain; adiabatic shear bands; FIB/TEM

Corresponding author: Zou Dongli, Ph. D., Associate Professor, Institute of Materials, China Academy of Engineering Physics, Jiangyou 621907, P. R. China, Tel: 0086-816-3626742, E-mail: donglizou@126.com