

纯钨高压扭转组织与性能的微观尺度分析

李萍, 华雅玲, 林泉, 王雪, 薛克敏

(合肥工业大学, 安徽 合肥 230009)

摘要: 采用高压扭转技术在 550 °C、1.5 GPa 压力下成功制得具有细晶组织的难熔金属钨, 借助 EBSD 技术研究了高压扭转变形组织晶粒尺寸、晶界角度以及晶粒取向的演化规律, 结合纳米压痕实验结果, 分析了应变对工业烧结纯钨微观力学性能的影响机理。结果表明, 高压扭转后材料内部微孔隙有效闭合, 组织细化显著, 大角度晶界含量快速升高。在应变较低时出现较为明显的沿<101>方向的择优取向; 随着应变的增加, 择优取向消失, 组织趋于均匀。应变较高(扭转 5 圈)时在晶界处出现了细小的动态再结晶晶粒。高压扭转变形引起的孔隙闭合、晶粒细化、晶格畸变、位错密度增加和大角度晶界形成, 导致屈服强度和纳米硬度随变形量的增大而不断提高; 而在致密度、残余内应力和高密度位错的共同作用下, 变形试样的弹性模量显著高于工业烧结纯钨, 但随着应变量的增大略有降低。

关键词: 纯钨; 高压扭转; 组织演化; 纳米压痕; 微观力学性能

中图分类号: TG146.4⁺11

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2019)07-2220-05

作为关键构件材料, 钨因其强度高、热膨胀系数低及抗腐蚀性优良等优点, 被广泛应用于航空航天、武器装备、核工业等众多领域^[1-3]。工业上多采用粉末冶金制坯和塑性加工改善性能相结合的方法制备钨, 但传统塑性加工工艺, 如轧制、挤压等, 其应力状态不适合低塑性钨的大应变变形, 因而组织细化和性能提升效果有限^[4-6]。

研究表明, 细晶钨具有高的强韧性、良好的高温力学性能、抗热冲击性能和抗辐照性能^[7, 8], 而大塑性变形工艺 (severe plastic deformation, SPD) 是制备超细晶甚至纳米晶材料的有效手段^[9, 10]。其中, 高压扭转 (high pressure torsion, HPT) 引入的高静水压力和大剪切变形能有效细化组织, 显著提升材料性能^[11]。近年来, 各国学者应用 HPT 工艺成功制备了 Al、Cu、Ti 以及铝合金和钨合金等金属的块体超细晶材料, 并对变形过程中晶粒细化、位错密度和晶界演化等对宏观力学性能的影响规律进行了系统研究^[12-14], 但关于纯钨 HPT 微观组织对其微纳米尺度力学性能的作用机理仍缺乏研究。为此, 本研究采用准限制型 HPT 工艺对纯钨进行不同扭转圈数的实验, 并结合电子背散射衍射分析 (electron backscattered diffraction, EBSD) 和纳米压痕测试结果, 研究晶粒细化、微观亚结构和大角度晶界形成、晶粒取向转变规律, 分析变形量对微观准静态力学性能的影响机理。

1 实验

以工业烧结态纯钨棒材 (纯度高于 99.95%, 相对密度为 97.3%) 为实验材料, 初始烧结钨的组织形貌如图 1 所示。由图可知, 其显微组织以尺寸约为 50 μm 的粗晶为主, 晶粒大小不一, 组织均匀性较差, 并且在晶界交汇处存在烧结形成的微孔。采用线切割工艺将原始钨棒加工成直径 10.0 mm, 厚度 2.0 mm 的圆片状样品。采用准限制型高压扭转工艺, 对试样进行压力 1.5 GPa, 扭转圈数为 1、2 和 5 圈的变形实验。实验模具温度 350 °C, 坯料温度 550 °C, 扭转速度 1.0 r/min。

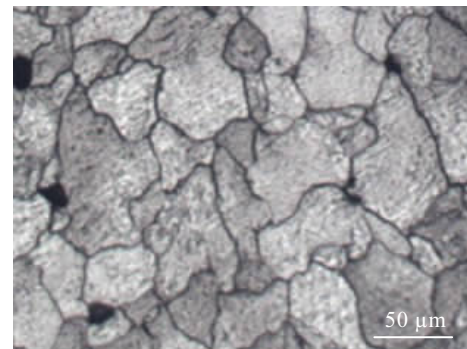


图 1 工业烧结纯钨的金相显微组织

Fig.1 OM image of sintered pure tungsten

收稿日期: 2018-07-10

基金项目: 国家自然科学基金 (51675154, 51705118)

作者简介: 李萍, 女, 1973 年生, 博士, 教授, 合肥工业大学材料学院, 安徽 合肥 230009, 电话: 0551-62901368, E-mail: li_ping@hfut.edu.cn

对变形试样进行研磨、抛光、清洗后，借助 EBSD 技术观测纯钨 HPT 变形后的微观组织形貌。测试仪器为德国 Zeiss SIGMA 500 型场发射扫描电镜，加载电压为 20 kV，电子束流为 13 nA，步长为 0.1 μm 。

利用带 Berkovich 金刚石压头的 Agilent G200 型纳米压痕仪在试样距中心 3 mm 处进行室温纳米压痕测试，载荷增加速率恒定，在 50 s 内达到最大载荷 100 mN，保压 10 s，然后以恒定速率在 40 s 内卸载到 10 mN，加卸载曲线如图 2 所示。

2 结果与分析

2.1 晶粒形貌及晶界形态分析

图 3 和图 4 分别为借助 EBSD 晶体学取向分析得到的 HPT 变形后纯钨组织的晶粒形貌和晶界类型分布以及晶界取向差分布。由图可知，试样经 HPT 变形后，微孔隙有效闭合，致密度提高；随着变形量的增加，晶粒不断细化，出现等轴化趋势，晶粒尺寸分布均匀性显著改善；并且平均晶界取向差和大角度晶界所占比例总体呈现增大的趋势，但在 2 圈时略有降低。1 圈 HPT 变形后，烧结组织中的微孔隙有效闭合，并且部分粗大的烧结晶粒被剪切细化至 $(3.65 \pm 0.68) \mu\text{m}$ ，但晶粒尺寸分布均匀性较差。高压扭转 2 圈后，晶粒尺寸进一步减小，平均尺寸为 $(2.60 \pm 0.57) \mu\text{m}$ ；但大角度晶界比例略有降低，由 1 圈的 46.1% 降至 41.5%，平均晶界取向差也由 17.86° 略微下降至 16.58° 。这主要是由于变形会在材料内部引入高密度位错，位错在不断增殖的同时，部分位错缠结形成位错胞、亚晶等形变亚结构，引起取向差为 $2^\circ \sim 5^\circ$ 的小角度晶界向取向差 $5^\circ \sim 15^\circ$ 的小角度晶界转化，导致晶粒细化和大

角度晶界转化的同时，平均晶界角度和大角度晶界含量的相对值降低。5 圈 HPT 变形后，晶粒尺寸被显著细化至 $(1.21 \pm 0.41) \mu\text{m}$ ，等轴化程度和组织均匀性不断提升的同时，在部分三叉晶界处出现了非常细小的等轴晶粒（如图 3c 圆圈部位所示）；晶界由小角度晶界向大角度晶界演化，平均晶界取向差增大至 24.42° ，大角度晶界比例显著上升至 62.9%，并且取向差大于 40° 的晶界比例增幅最明显。这是因为随着变形量的增加，晶内位错结构发生缠结、重排，位错胞等形变亚结构不断吸收位错以增大晶界取向差，在连续动态再结晶机制下，在晶界处形成具有大角度晶界的细小等轴晶组织，大角度晶界含量提高。

2.2 晶粒取向分析

图 5 为 HPT 变形后纯钨组织的晶粒取向分布情况。由图可知，1 圈 HPT 变形后，变形组织中晶粒取向以 $\langle 101 \rangle$ 方向为主；随着变形量的增加，其他方向

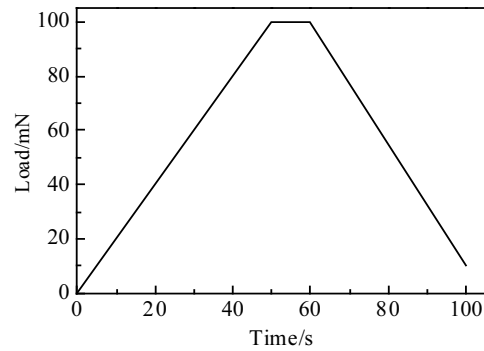


图 2 纳米压痕测试加载-卸载曲线

Fig.2 Loading and unloading curve during nano-indentation

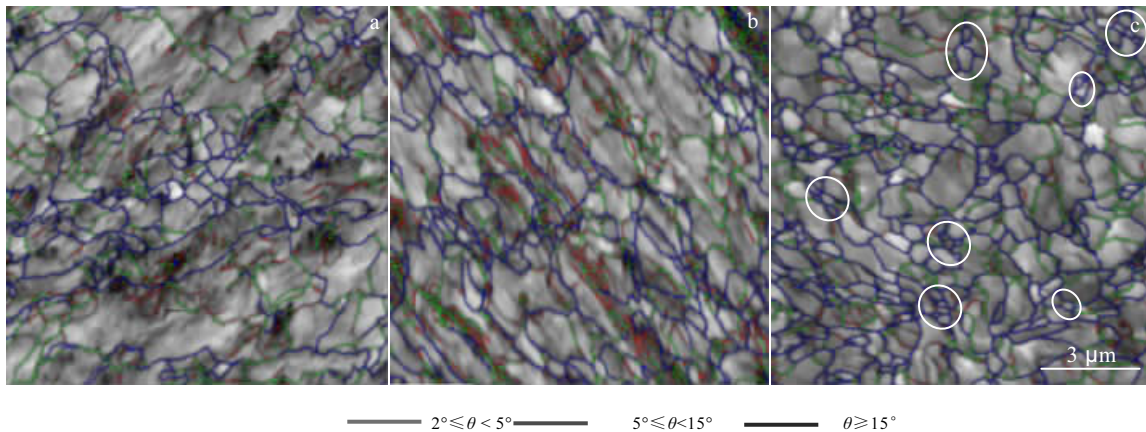


图 3 不同扭转圈数下纯钨的晶粒形貌及晶界类型分布图

Fig.3 Grain boundary misorientation images of pure tungsten after HPT with different turning numbers: (a) $N=1$ turn, (b) $N=2$ turns, and (c) $N=5$ turns

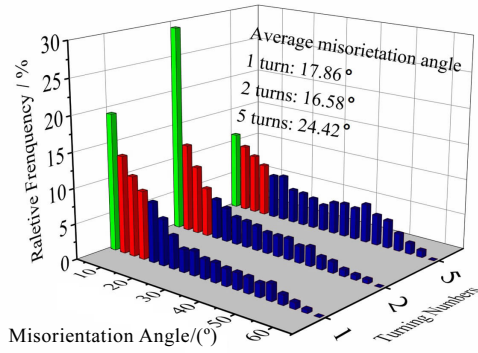


图 4 不同扭转圈数下纯钨的晶界取向差分布图

Fig.4 Distribution of misorientation angle for pure tungsten after HPT

的晶粒数量略有增加，<101>方向的择优取向逐渐减弱；扭转 5 圈时，晶粒取向趋于均匀。这是由于 HPT 变形后不同变形量下材料的应力状态、各滑移系开动难易程度以及晶粒变形协调行为的不同所致的。应变较小时，滑移阻力小的滑移系达到临界分切应力，在变形过程中率先发生滑移；随着等效应变增大，为了保持变形协调、稳定、持续的进行，其他方向的滑移系也陆续开动，并且在连续动态再结晶的作用下，晶粒取向趋于均匀。

2.3 变形强化机理分析

纳米压痕测试过程中，加载时试样表面先后发生弹性和塑性变形，卸载过程中弹性变形恢复，而塑性变形最终使样品表面形成了压痕。图 6 为纳米压痕试验测得的载荷-位移曲线。由图可知，初始样的塑性压

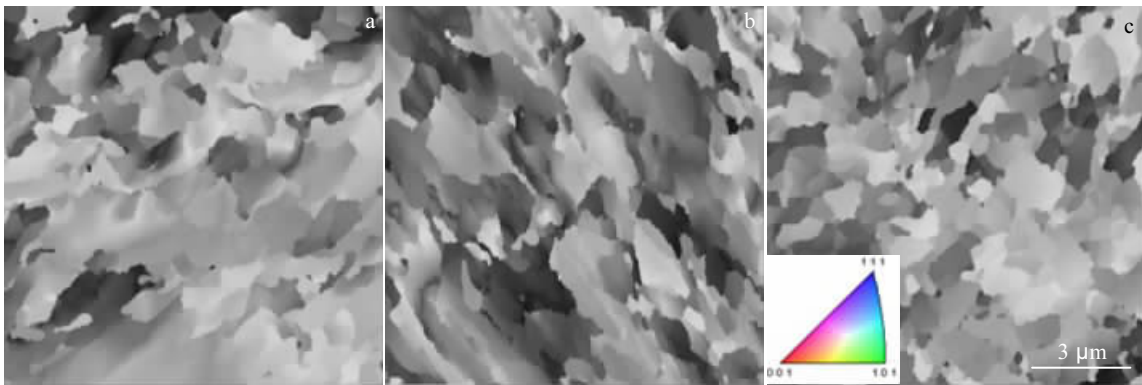


图 5 不同扭转圈数下纯钨的晶粒取向成像

Fig.5 Grain orientation maps of pure tungsten after HPT with different turning numbers: (a) $N=1$ turn, (b) $N=2$ turns, and (c) $N=5$ turns

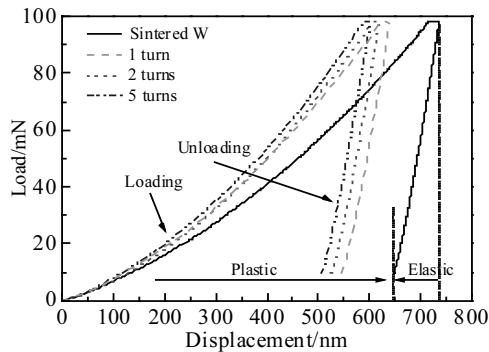


图 6 纯钨高压扭转变形前后的载荷-位移曲线

Fig.6 Loading-displacement curves of pure tungsten before and after HPT during nano-indentation

入深度约为 648 nm，HPT 变形后由 1 圈的 552 nm 逐步减小至 5 圈的 505 nm。说明 HPT 可以显著提升试样的变形抗力，并且扭转圈数越大，变形后试样的变形抗力越大，这体现了 HPT 变形对纯钨的强化作用。

图 7 为 HPT 变形前后工业烧结纯钨的纳米硬度和弹性模量分布图。由图可知，HPT 变形后材料的纳米硬度显著升高，由初始烧结钨的 (5.99 ± 0.17) GPa 提高至 8.50~8.90 GPa；随着变形量的增加，变形试样的纳米硬度快速升高后趋于平稳。这主要是由孔隙闭合、晶粒细化、晶格畸变、位错密度增加和大角度晶界形成共同作用的结果。1 圈 HPT 变形后，材料的纳米硬度迅速上升至 (8.50 ± 0.16) GPa，相较于初始烧结钨提升了 42%。这是由于 1 圈 HPT 不仅导致孔隙有效闭合，颗粒间结合力升高^[15]，而且晶粒显著细化，单位体积内的晶界面积增大，变形产生的大角度晶界处于高能

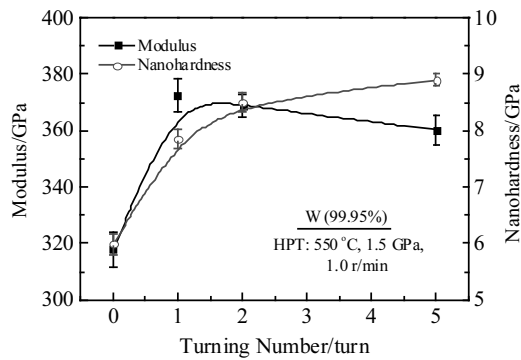


图7 高压扭转纯钨弹性模量和纳米硬度

Fig.7 Modulus and nanohardness of pure tungsten after HPT

状态,阻碍位错通过^[16];同时,位错密度急剧增加,晶格畸变显著增大,导致晶内位错缠结,微观应力增大,阻碍位错运动,从而使材料的硬度提高。随着变形量的增大,材料达到近似全致密状态,虽然晶粒不断细化,但在大扭转圈数时,材料发生连续动态再结晶,位错密度趋于饱和,因而5圈HPT变形后,试样的纳米硬度缓慢升高至(8.90±0.11)GPa。虽然变形初期形成了沿<101>方向的择优取向,但这种择优取向非常微弱,可以认为对纳米硬度影响不大。

HPT变形后,工业烧结纯钨的弹性模量显著升高,但随着变形量的增加,弹性模量缓慢降低。初始烧结合态纯钨的弹性模量为(319±6)GPa,低于相关文献中烧结合态钨完全致密状态的385GPa^[17],这是由于本研究所用的烧结合态钨材料致密度较低,存在较多孔隙所致^[18]。1圈HPT变形后弹性模量增至(373±6)GPa,略低于完全致密状态,主要原因是HPT变形有效闭合微孔隙,提升材料致密度,变形引入了一定的残余内应力和位错,但其对模量的降低作用低于高致密度对模量的提升作用,故而弹性模量升高^[19]。随着变形量进一步增大,此时材料已达到近似全致密状态,弹性模量仅受到大变形引入的高密度位错和高残余内应力的影响,位错、晶粒和亚晶的不均匀变形以及严重的晶格畸变,通过影响原子间结合力导致材料的弹性模量逐步下降至(360±5.5)GPa。需要指出的是,虽然HPT变形过程中出现了前文所述的择优取向,但钨是弹性各向同性材料,晶粒取向对弹性模量基本没有影响^[20]。

借助大型商业有限元软件Abaqus对纳米压痕过程进行有限元模拟,简化压头为具有相同面积-压深函数的半锥角为70.3°的圆锥压头,以初始试样最大压痕深度的10倍尺寸作为试样厚度,并采用2D轴对称模型及比例划分网格的方法建立模型。以文献[21]中烧

结合态纯钨在室温下的准静态压缩曲线作为参考基准,并代入纳米压痕测得的弹性模量,通过对比载荷-位移曲线的模拟结果和纳米压痕实验结果,修正得出材料的塑性性能,如图8所示。由图可知,纯钨经HPT变形后,屈服强度显著升高,由初始的2039MPa升至3747MPa,提升了近1倍;随着变形量的增加,屈服强度快速升高后趋于平稳,这与图7所示的硬度性能变化趋势相吻合。因为强度与硬度的影响因素基本相同,所以在孔隙闭合、晶粒细化、晶格畸变、位错密度增加和大角度晶界形成的共同作用下,强度的变化规律与硬度基本一致。

值得说明的是,纳米压痕测得钨的纳米硬度有别于晶粒尺寸相近的单晶钨的6.2GPa^[22]以及多晶钨的维氏硬度5100MPa^[23]。这是因为,纳米压痕测试的影响区域约为压入深度的10倍,对比EBSD测得的晶粒尺寸可知,纳米压痕测试的变形由若干个晶粒协调完成。相比较单晶变形,存在晶界作用,而作用范围远小于宏观整体变形,故而纳米压痕测试结果介于单晶体微观性能和多晶体宏观性能之间^[24]。

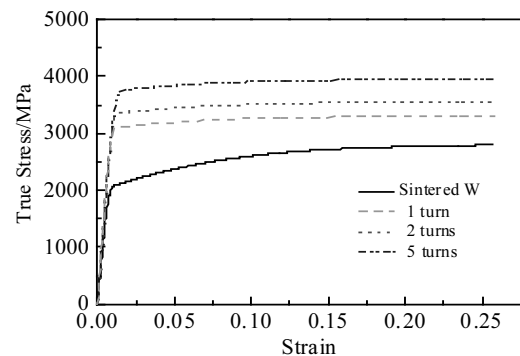


图8 拟合的纯钨高压扭转后的应力-应变曲线

Fig.8 Simulated stress-strain curves of pure tungsten after HPT

3 结 论

1) 工业烧结合态钨经5圈HPT变形后,在剪切细化和连续动态再结晶的共同作用下,晶粒尺寸由50μm逐步细化到约1.21μm,同时大角度晶界比例显著提升至62.9%。

2) 1圈HPT变形后,变形组织中晶粒取向以<101>方向为主;随着变形量的增加,这种择优取向逐渐减弱;5圈变形后,晶粒取向趋于均匀。

3) 致密度、残余内应力和位错密度共同影响工业烧结合态钨的弹性模量,使其显著提升后随着变形量的增加逐步降低;并且在孔隙闭合、晶粒细化、晶格畸变、

位错密度增加和大角度晶界形成的共同作用下, 试样的屈服强度和纳米硬度随着变形程度的增加快速上升后趋于平稳。

参考文献 References

- [1] Yin Weihong (殷为宏), Tang Huiping (汤慧萍). *Engineering Application of Refractory Metal Materials*(难熔金属材料与工程应用)[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2012: 25
- [2] Roth J, Tsitrone E, Loarte A *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2009, S 390-391(1): 1
- [3] Zhang Peng(张鹏), Zhu Qiang(朱强), Qin Heyong(秦鹤勇) *et al. Materials Review*(材料导报)[J], 2014, 28(6): 27
- [4] Srivatsan T S, Manigandan K, Petraroli M *et al. Advanced Powder Technology*[J], 2013, 24(1): 190
- [5] Yang C, Fan J, Zheng C *et al. Rare Metal Materials and Engineering*[J], 2014, 43(12): 3104
- [6] Zhang X, Yan Q, Lang S *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2016, 468: 339
- [7] Kurishita H, Amano Y, Kobayashi S *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2007, 367(B): 1453
- [8] Palacios T, Reiser J, Hoffmann J *et al. International Journal of Refractory Metals & Hard Materials*[J], 2015, 48: 145
- [9] Langdon T G. *Revista De Metalurgia*[J], 2008, 44(6): 556
- [10] Kawasaki M, Figueiredo R B, Langdon T G. *Letters on Materials*[J], 2015, 5(3): 233
- [11] Zhilyaev A P, Langdon T G. *Progress in Materials Science*[J], 2008, 53(6): 893
- [12] Edalati K, Toh S, Iwaoka H *et al. Acta Materialia*[J], 2012, 60(9): 3885
- [13] Sharman K, Bazarnik P, Brynk T *et al. Journal of Materials Research & Technology*[J], 2015, 4(1): 79
- [14] Sabbaghianrad S, Langdon T G. *Materials Science & Engineering A*[J], 2014, 596: 52
- [15] Han Yong(韩勇), Fan Jinglian(范景莲), Liu Tao(刘涛) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2012, 41(7): 1273
- [16] Mungole T, Kumar P, Kawasaki M *et al. Journal of Materials Science*[J], 2015, 50(10): 3549
- [17] Song Guiming(宋桂明), Wang Yujin(王玉金), Zhou Yu(周玉) *et al. Powder Metallurgy Technology*(粉末冶金技术)[J], 2001, 19(5): 266
- [18] Wang J C. *Journal of Materials Science*[J], 1984, 19(3): 801
- [19] Liu Xuejie(刘学杰), Ma Qinfang(马琴芳), Dong Haikuang(董海宽) *et al. Materials Review*(材料导报)[J], 2010, 24(8): 73
- [20] Huang H, Wu Y Q, Wang S L *et al. Materials Science & Engineering A*[J], 2009, 523(1-2): 193
- [21] Pan Z, Guo Y Z, Mathaudhu S N *et al. Journal of Materials Science*[J], 2008, 43(23-24): 7379
- [22] Hou Lizhen, Wang Shibang, Chen Guoliang *et al. Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2013, 23: 2323
- [23] Hao T, Fan Z Q, Zhao S X *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 433(1-3): 351
- [24] Voyiadjis G Z, Yaghoobi M. *Crystals*[J], 2017, 7(10): 321

Microstructure Evolution and Micro-mechanical Properties of Pure Tungsten During High Pressure Torsion

Li Ping, Hua Yaling, Lin Quan, Wang Xue, Xue Kemin
(Hefei University of Technology, Hefei 230009, China)

Abstract: Near-equiaxed fine grains with the average grain size of 1.21 μm of pure tungsten were fabricated via high pressure torsion (HPT) at 550 $^{\circ}\text{C}$ under 1.5 GPa. The influence of HPT processing with various turning numbers on microstructure and micro-mechanical properties of sintered commercially pure tungsten was investigated by EBSD and nano-indentation experiments. It is found that the pores in the material are closed effectively, the grains are refined significantly and the ratio of high angle boundary increases rapidly after HPT processing. Moreover, when the strain is relatively low (at the turning number of 1), there is a preferred grain orientation along $\langle 101 \rangle$, which weakens to disappear with the strain increasing; when the strain is high (at the turning number of 5), some small dynamic recrystallites are generated at grain boundary. In addition, the nanohardness and yield strength increase obviously as the strain increases, which is due to pores closure, grain refinement, lattice distortion, dislocation density increase and high angle grain boundary formation; the combination of relative density, residual stress and high density dislocation, makes the elastic modulus of HPT-processed samples higher than that of sintered commercially pure tungsten, but it decreases slightly with the strain increasing during the processing.

Key words: pure tungsten; high pressure torsion; microstructure evolution; nano-indentation; micro-mechanical properties

Corresponding author: Xue Kemin, Ph. D., Professor, School of Materials Science and Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, P. R. China, Tel: 0086-551-62901368, E-mail: xuekm0721@sina.com