

热处理对表面纳米化工业纯锆疲劳性能的影响

张聪惠, 李丰博, 王耀勉

(西安建筑科技大学, 陕西 西安 710055)

摘 要: 采用表面机械研磨处理 (SMAT) 对工业纯锆进行表面强化, 使材料表面组织细化并引入残余压应力, 通过热处理 (HT) 使表层残余压应力释放而纳米晶尺寸保持不变。利用光学显微镜 (OM) 和透射电子显微镜 (TEM) 对试样表层显微组织进行表征, 利用 X 射线应力仪测试距试样表面不同深度处的残余应力, 通过四点弯曲疲劳试验对热处理前后试样疲劳性能进行测试, 利用扫描电子显微镜 (SEM) 对疲劳断口形貌进行观察, 探讨晶粒细化及残余压应力对疲劳性能的影响。结果表明: SMAT 使工业纯锆表层形成厚度 150 μm 变形层且最表面晶粒细化至 35 nm, 并得到深度为 334 μm 、最大应力为 -695.5 MPa 的残余压应力层; 热处理后 SMAT 处理工业纯锆表层残余压应力场深度减至 115 μm 、最大压应力降为 -148.8 MPa, 残余压应力场的变化对裂纹源位置及材料的疲劳极限影响明显。SMAT 处理使工业纯锆疲劳极限较未处理试样提升 23%; 通过热处理使其表层残余压应力释放后, 其疲劳极限较未 SMAT 处理试样提高 13%。

关键词: 工业纯锆; 疲劳性能; 热处理; 残余应力; 晶粒细化

中图分类号: TG146.4⁺14

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2018)10-3233-05

工程材料的磨损、疲劳失效多始于材料表面^[1], 通过优化材料表面组织结构和性能来提高材料的整体服役寿命是改善材料性能的一种途径。Lu^[2]于 1999 年提出了金属材料表面纳米化, 通过使材料表面产生剧烈塑性变形, 在表面制备出一定厚度的纳米结构层, 通过表层组织和性能的优化, 提高材料整体力学性能和环境服役行为。表面机械研磨技术 (SMAT) 因操作方便, 结果可靠性高等优点成为科研工作者的关注热点。利用该技术已经实现了钢^[3,4]、铝^[5]、钛^[6]、锆^[7]等金属材料的表面纳米化。

晶粒细化对材料的疲劳性能有重要影响。Hanlon^[8]等人采用电沉积的方法制备了 3 种不同晶粒尺寸的纯 Ni, 通过比较它们的疲劳寿命, 来研究晶粒尺寸对合金疲劳性能的影响, 发现晶粒细化能延长纯 Ni 的疲劳寿命, 提高纯 Ni 的疲劳极限。残余压应力是提高疲劳性能的另一个关键因素, 它一方面可以抵消外加载荷^[9,10], 另一方面在残余压应力的作用下, 裂纹闭合水平增大, 裂纹扩展的阻力增加^[11,12]。

锆及锆合金具有良好的耐腐蚀和高温力学性能, 且因其热中子吸收截面小, 被广泛用于核动力反应堆的燃料包壳和阀门、管路、高压容器等堆内结构材料。因此, 如何防止核用锆材的失效已成为核安全防护的

重要课题。

本工作对工业纯锆表面进行 45 min SMAT 处理, 使表层晶粒细化至纳米级, 同时引入残余压应力场。通过热处理, 以消除残余应力并维持表层晶粒尺度。通过对未处理、SMAT 处理、SMAT+热处理工业纯锆的四点弯曲疲劳性能进行测试, 分析残余应力及表面细化组织对工业纯锆疲劳性能的影响。

1 实验

实验材料为 100 mm×100 mm×4 mm 的热轧退火态工业纯锆, 平均晶粒尺寸约 30 μm , 其化学成分(质量分数, %)为 0.25 Fe, 0.13 O, 0.08 C, 0.05 N, 0.012 H。采用 SNC-I 型 SMAT 装置对材料进行表面纳米化处理。所用弹丸为铸钢丸, 密度为 7.8 g/cm³, 直径为 3 mm, 初始频率为 50 Hz, 对板材进行 45min 单面 SMAT 处理。采用真空度为 1.0×10⁻³ Pa 的 GSL-1400X 真空气氛保护炉进行热处理。根据前期研究结果^[13], 当温度高于 350 $^{\circ}\text{C}$ 时, 其表层及剧烈变形区组织将发生明显变化, 因此本研究热处理条件定为, 以 60 $^{\circ}\text{C}/\text{h}$ 升温速率升至 350 $^{\circ}\text{C}$, 保温 120 min, 随炉冷却, 使表层组织在不发生太大变化的条件下最大程度消除残余应力。

收稿日期: 2017-10-22

基金项目: 国家自然科学基金面上项目 (51274160); 陕西科技统筹创新工程计划项目 (2015KTCQ01-80); 陕西省基金项目 (2016JM5032); 陕西省教育厅科技项目 (13JS061)

作者简介: 张聪惠, 女, 1974 年生, 博士, 教授, 西安建筑科技大学冶金工程学院, 陕西 西安 710055, 电话: 029-82201862, E-mail: jiandazhang2010@hotmail.com

采用 JEM-3010 透射电子显微镜观察样品微观组织形貌; 采用 S-2700 扫描电镜观测疲劳断口; 采用 XSTRESS3000 X 射线应力仪测定热处理前后残余应力沿深度方向的分布特征, 距表层不同深度的表面通过电解抛光技术获得。应力测试采用 Ti 靶特征 X 射线, 衍射角 $2\theta=136^\circ$, 特征晶面 (211)。采用 Instron 8801 疲劳试验机进行四点弯曲疲劳性能测试, 疲劳试验采用固定载荷比 ($R=0.1$), 改变平均应力幅的加载条件。试样尺寸为: 厚度 3.3 mm, 宽度 7.1 mm, 长度 25.4 mm, 上表面棱角采用倒角处理, 防止应力集中导致试样沿棱断裂。

2 实验结果

2.1 显微组织

表面纳米化工业纯锆的横截面显微组织如图 1 所示。从金相照片中可以看出, 材料表层组织与基体之间呈梯度变化 (表层纳米晶、过渡孪晶、基体), 在纳米化的过程中产生了大量的孪晶。这是由于工业纯锆是密排六方结构, 在室温下滑移系少, 塑性变形以滑移和孪晶两种机制进行, 因而, 在表层组织中会出现大量随机分布的孪晶。从图中可以看出, SMAT 处理 45 min 后, 在试样表面形成了厚度 150 μm 的变形层; 通过热处理后表层组织依旧呈梯度分布, 变形层内的组织也未发生明显变化。

对最表面组织进行 TEM 分析。图 2 为热处理前后 SMAT 处理工业纯锆试样最表面的 TEM 照片及相

应的 SAED 花样。图 2a 可以看到, 经过 SMAT 处理的试样表面发生剧烈塑性变形, 表面有大量的位错存在, 且有位错缠结。选区电子衍射花样呈多晶环状分布, 表明纳米晶在此范围内大量随机分布, 晶粒尺寸从暗场像更明显看出, 如图 2b 所示晶粒约为 35 nm。图 2c、2d 为热处理后的明场与暗场像, 可以看出位错密度下降明显, 但晶粒尺寸基本保持不变。

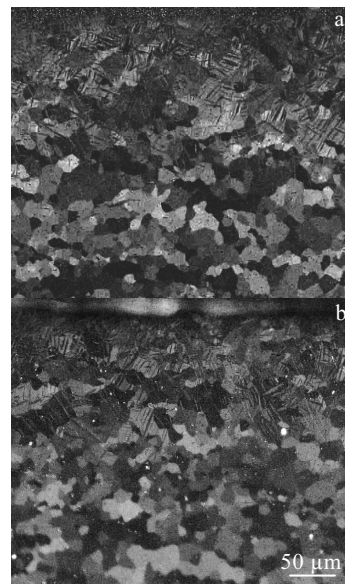


图 1 表面纳米化工业纯锆的横截面显微组织

Fig.1 Cross-sectional microstructures of CP-Zr: (a) SMAT and (b) SMAT+HT

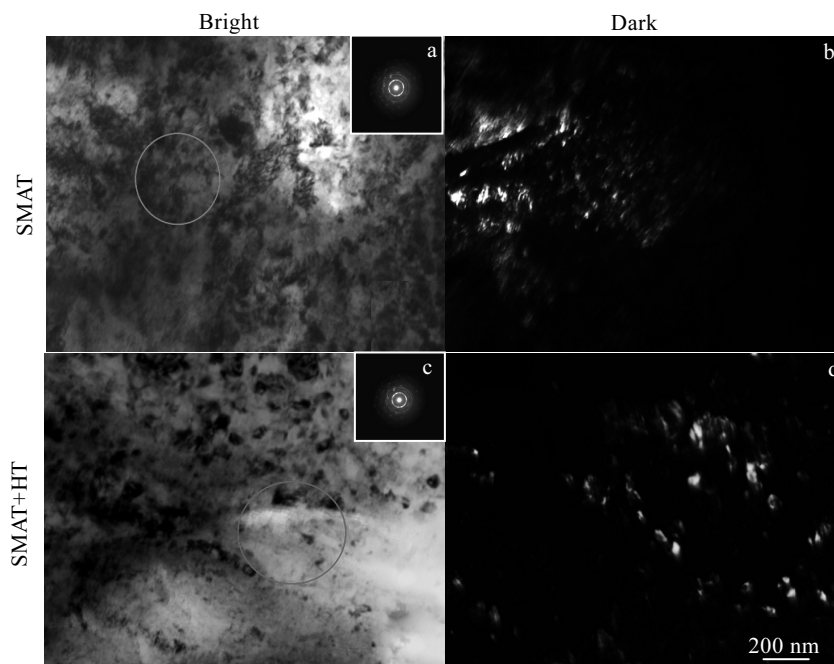


图 2 热处理前后 SMAT 处理工业纯锆最表层的 TEM 形态

Fig.2 TEM images of the top surface for SMATed CP-Zr before (a, b) and after (c, d) HT

2.2 残余应力

SMAT 处理试样在热处理前后变形层残余应力场分布如图 3 所示。由图 3 可知, SMAT 处理在试样表层引入残余压应力场, 经热处理后, 试样的残余应力场明显释放。本研究通过表面残余压应力 σ_{srs} , 最大残余压应力 σ_{mrs} , 最大残余压应力距表面距离 Z_m 和残余压应力场深度 Z_0 4 个参数来表征应力场特征。

残余应力场的 4 个特征参数如表 1。热处理后, SMAT 处理试样表层残余压应力 σ_{srs} 由 -466.5 MPa 降至 -84.7 MPa; SMAT 试样最大残余应力 σ_{mrs} 由 -695.5 MPa 降低至 -148.8 MPa; 残余压应力场深度 Z_0 也明显减小, 其值由 334 μm 减小到 115 μm 。

2.3 疲劳性能

图 4 为应力比 $R=0.1$ 条件下工业纯锆的 $S-N$ 曲线。将 SMAT 处理试样与原始试样疲劳数据进行对比发现, 存在明显的疲劳极限点。实验测得原始材料疲劳极限为 159 MPa。SMAT 试样疲劳极限为 195 MPa, 较未处理试样提升 23%。在 SMAT+热处理条件下, 材料的疲劳极限为 179 MPa, 其疲劳极限比 SMAT 试样的疲劳极限明显降低。可以认为, 在热处理后表层晶粒未发生明显长大, 而表层残余压应力发生了明显释放, 使得材料的疲劳强度降低, 但是在表层强化组织的作用下, 350 $^{\circ}\text{C}$ 热处理试样的疲劳性能依然优于原始试样(其疲劳极限较原始试样提高 13%)。

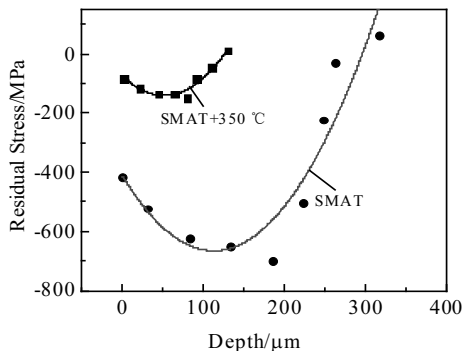


图 3 残余应力沿深度分布

Fig.3 Residual stress distribution along different depths

表 1 SMAT 处理工业纯锆热处理前后表层残余应力场的特征参数

Table 1 Characteristic parameters of residual stress for SMATed CP-Zr before and after HT

Treatment process	$\sigma_{\text{srs}}/\text{MPa}$	$\sigma_{\text{mrs}}/\text{MPa}$	$Z_m/\mu\text{m}$	$Z_0/\mu\text{m}$
SMAT	-466.5	-695.5	186	334
SMAT+HT	-84.7	-148.8	54	115

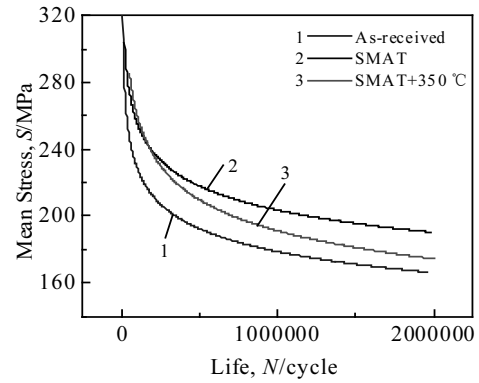


图 4 SMAT 处理工业纯锆热处理前后疲劳 $S-N$ 曲线

Fig.4 Fatigue $S-N$ curves of SMATed CP-Zr before and after HT

3 结果分析

由以上实验结果可知, SMAT 处理改善了材料的疲劳性能, 提高了材料的疲劳寿命。SMAT 处理使材料表面产生剧烈的塑性变形, 强化了表层组织, 引入残余压应力场。

表面纳米化是金属材料表层发生严重塑性变形的结果, 会使变形组织内产生高密度的位错、晶界、亚晶界等晶体缺陷。细晶组织可以提高材料在疲劳载荷作用下的变形抗力, 大量的晶界在室温下, 会对位错的滑移产生较强的阻碍, 增加裂纹扩展的阻力, 对疲劳强度的提高有利。此外, 表层形成高密度位错, 可以有效地阻止疲劳裂纹的萌生和扩展^[14], 进而提高材料的抗疲劳性能。

残余压应力是另一个影响疲劳性能的因素, 由图 5 可以看出, 在外加应力的作用下, 材料越靠近表层受力越大, 超出疲劳极限便会发生疲劳断裂。残余应力与外加应力在材料表面发生交互作用后, 材料实际

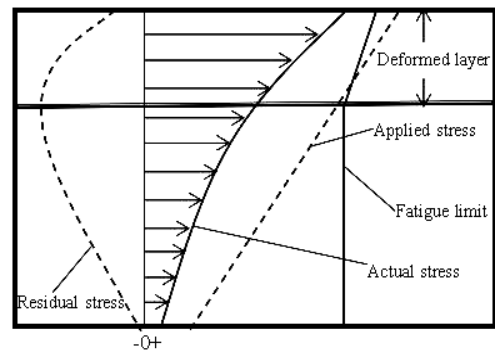


图 5 横截面受力示意图

Fig.5 Schematic of stress on cross section

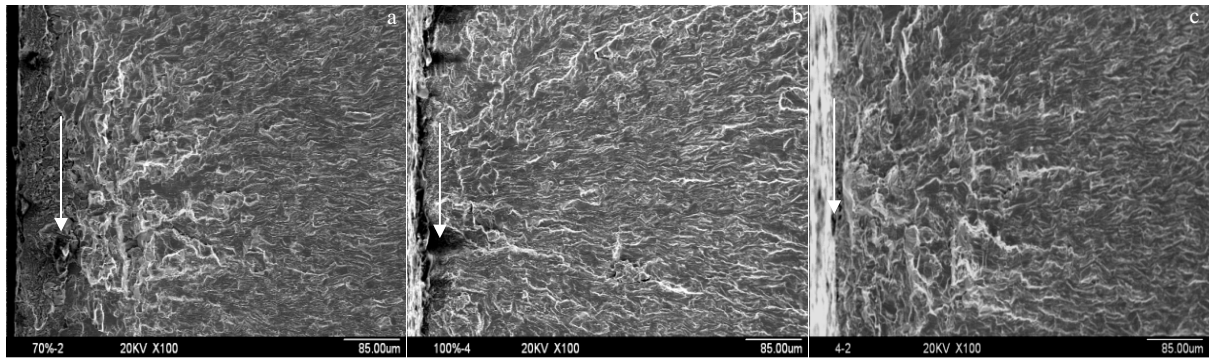


图 6 热处理前后工业纯锆的疲劳裂纹源

Fig.6 Fatigue fracture morphologies of crack source for CP-Zr: (a) SMAT, (b) untreated, and (c) SAMT+HT

承受的应力值有不同程度的下降，由此提高材料的疲劳断裂抗力。

同时，由于表面组织的强化及残余压应力的引入，材料的裂纹源转移至次表层，次表层的缺陷相对表面较少，且存在四周晶粒的束缚，次表层裂纹源更难出现，使得材料的疲劳极限增大，进而提高其疲劳断裂抗力。

本研究中，SMAT 处理试样经热处理后其疲劳极限降低。因为在热处理过程中，试样内部位错运动，发生位错的重组和异号位错抵消，使表层残余应力显著下降，残余应力强化作用减弱，裂纹源又回到表层，图 6 为热处理前后裂纹源分布图。可以看出 SMAT 处理后，裂纹源位于次表层，热处理后残余应力释放，裂纹源回到表面导致其疲劳极限有所下降。

上述分析表明，SMAT 改善材料的疲劳性能是“组织结构强化机制”和“残余应力强化机制”导致。表层强化组织会使表层的疲劳极限提高；残余应力也是影响材料疲劳性能的重要因素，可以抵消外加载荷，并且与表面强化组织共同作用使裂纹源转移至次表层，从而提高材料的疲劳性能。

4 结 论

1) SMAT 处理 45 min，工业纯锆表层形成厚度 150 μm 的变形层，表面晶粒细化至 35 nm，还形成了深度达 334 μm 的残余压应力场，经过热处理后表面组织依旧呈梯度变化，最表面晶粒未发生明显长大，但应力场深度减至 115 μm 。

2) SMAT 试样，由于“残余应力强化机制”和“组织结构强化机制”的作用，材料的裂纹源转移至次表层，疲劳极限较未处理样提升 23%。

3) SMAT 试样通过热处理后，由于残余压应力的释放，裂纹源又萌生在表面，但表层强化组织未发生

明显变化，在“组织结构强化机制”的作用下，疲劳极限较未处理样提升 13%。

参考文献 References

- [1] Wagner L. *Materials Science and Engineering A*[J], 1999, 263(2): 210
- [2] Lu K, Lu J. *Journal of Materials Science Technology*[J], 1999, 15(3): 193
- [3] Sun Z, Retraint D, Baudin T et al. *Materials Characterization*[J], 2017, 124: 117
- [4] Sumit Bahla, Satyam Suwasa, Tamàs Ungòrb et al. *Acta Materialia*[J], 2017, 122: 138
- [5] Wen L, Yuan Y, Wang Y et al. *Rare Metal Materials & Engineering*[J], 2015, 44(6): 1320
- [6] Zhu K Y, Vassel A, Brisset F et al. *Acta Materials*[J], 2004, 52(14): 4101
- [7] Zhang Conghui(张聪惠), Yu Fei(于 飞), Wang Yaomian(王耀勉) et al. *Rare Metal Materials and Engineering* (稀有金属材料与工程)[J], 2014, 43(9): 2147
- [8] Hanlon T, Kwon Y N, Suresh S. *Scripta Materialia*[J], 2003, 49(7): 675
- [9] Wang Renzhi(王仁智). *China Surface Engineering*(中国表面工程)[J], 2012, 25(6): 1
- [10] Gao Yukui(高玉魁). *Rare Metal Materials and Engineering* (稀有金属材料与工程)[J], 2004, 33(11): 1209
- [11] Beghini M, Bertini L. *Engineering Fracture Mechanics*[J], 1990, 36(3): 379
- [12] Schnubel D, Huber N. *Engineering Fracture Mechanics*[J], 2012, 84: 15
- [13] Zhang Conghui(张聪惠), He Xiaomei(何晓梅), Lan Xinzhe(兰新哲) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有

金属材料与工程[J], 2010, 39(12): 2232

[14] Ya Nan(亚 男), Chen Shujiang(陈树江), Dong Xichun(董希

淳). *Theory and Application of Dislocation*(位错理论及其应

用)[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2007: 122

Effect of Heat Treatment on Fatigue Properties of Surface Nanocrystallized Commercial Pure Zirconium

Zhang Conghui, Li Fengbo, Wang Yaomian

(Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China)

Abstract: Commercially pure zirconium was strengthened by surface mechanical attrition treatment (SMAT) to refine grains on the surface and induce the compressive residual stress. Then, heat treatment was conducted to release the residual stress while retaining the refined microstructure. The surface microstructures were examined by optical microscope (OM) and transmission electron microscope (TEM). Residual stresses at different depths were measured by X-ray diffraction method. Fatigue properties were evaluated by a four-point bending fatigue test. The morphology of the fracture surface was observed by scanning electron microscope (SEM). And influence mechanism on fatigue properties was analyzed. Based on the experiment, it can be found that the deformation layer with a depth of 150 μm forms after SMAT. The average grain size of the surface is refined to 35 nm. And a residual stress field with a depth of 334 μm and a maximum stress of -695.5 MPa can be obtained. After heat treatment, the depth of residual stress field decreases to 115 μm and the maximum stress declines to -148.8 MPa . It is found that the residual compressive stress can improve the fatigue limit and affect the location of crack source significantly. The fatigue limit of SMATed samples increases by 23% compared with that of the untreated samples. After heat treatment, the fatigue limit of SMATed sample increases by 13% compared to that of the samples without SMAT.

Key words: pure zirconium; fatigue property; heat treatment; residual compressive stress; grain refinement

Corresponding author: Zhang Conghui, Ph. D., Professor, School of Metallurgical Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, P. R. China, Tel: 0086-29-82201862, E-mail: jiandazhang2010@hotmail.com