

文章编号: 1673-5196(2019)02-0010-06

SEM 原位观察双尺度纳米晶 304 不锈钢的断裂行为

盛捷, 喇培清, 任军强, 马吉强, 周学渊, 石玉

(兰州理工大学 省部共建有色金属先进加工与再利用国家重点实验室, 甘肃 兰州 730050)

摘要: 利用原位拉伸扫描电镜, 观察并研究了“铝热反应法”制备出的 304 奥氏体不锈钢试样经退火与轧制处理后动态拉伸过程中裂纹的萌生与扩展情况及其与双尺度微观组织之间的相互影响关系。结果表明: 在拉伸过程中, 微裂纹易生成于微米晶和纳米晶间的晶界处, 在纳米晶基体中延伸、扩展。裂纹扩展路径受拉伸应力状态以及板材内部晶粒和粗大第二相分布的影响。双尺度组织中微裂纹产生的背应力可有效减缓裂纹扩展速度, 从而增强了材料整体的延展性。

关键词: 双尺度分布; 不锈钢; 原位拉伸; 断裂行为

中图分类号: TG142.1 **文献标志码:** A

Fracture behavior of bimodal nano-crystalline 304 stainless steel in-situ observed with SEM

SHENG Jie, LA Pei-qing, REN Jun-qiang, MA Ji-qiang, ZHOU Xue-yuan, SHI Yu

(State Key Laboratory of Advanced Processing and Recycling of Nonferrous Metals, Lanzhou Univ. of Tech., Lanzhou 730050, China)

Abstract: In-situ tension scanning electron microscope was used to observe and study the germination and propagation of cracks in specimen of 304 austenitic stainless steel, which was prepared by means of aluminothermic reaction method and processed beforehand by annealing and rolling during its dynamic tension process. The mutual influence of bimodal microstructure and cracks on each other was researched, also. The result showed that it would be easy for the microcracks to form at grain boundaries between microcrystalline and nanocrystalline phases and extend and expand in nanocrystalline matrix. The propagation path of cracks would be affected by the tensile stress, grain size, and distribution of bulky second phase. The back stress produced by micro-cracks in bimodal structure could effectively alleviate the speed of crack propagation, so that the overall ductility of the material would be enhanced.

Key words: bimodal distribution; stainless steel; in-situ tension; fracture behavior

奥氏体不锈钢因其优越的耐蚀性、可焊接性, 且不具备磁性, 广泛应用于化工、生物、航天、核能、医疗器械和生物工程等领域, 其中 304 奥氏体不锈钢是其典型钢种之一^[1]。304 不锈钢的密度一般约为 7.93 g/m^3 , 抗拉强度大于 520 MPa, 条件屈服强度大于 205 MPa, 伸长率大于 40%, 硬度小于 200 HV^[2]。然而纳米晶不锈钢的力学性能却不尽人意。研究表

明在纳米晶材料中引入双尺度结构^[3-5], 可明显改善纳米晶不锈钢材料的低塑性, 有望获得高强度高塑性的良好匹配^[6]。双尺度分布复相组织结构因其可精确控制纳米晶/微米晶体积分数并可避免非本征低塑性的出现, 是大幅提高铁基材料强度并使其保持较好塑性的可行路线。

“铝热反应熔化法”可制备出直径大于 200 mm、厚度大于 10 mm 的大块微米/纳米双峰尺度 304 奥氏体不锈钢^[7-8], 并且对制备出的铸态不锈钢进行不同等温处理和轧制工艺, 可调控材料的组织与力学性能。该方法简单快速、技术稳定、能耗低, 有望投入工业化生产。本文通过原位动态观察技术对“铝热反

收稿日期: 2018-05-20

基金项目: 国家自然科学基金(51561020), 甘肃省高等学校科研项目(2018A-020), 兰州市人才创新创业项目(2017-RC-20)

作者简介: 盛捷(1980-), 女, 甘肃武威人, 助理研究员。

应熔化法”获得的 304 奥氏体不锈钢进行拉伸实验, 研究其断裂过程中微观裂纹萌生和扩展的过程, 探讨双尺度结构对裂纹萌生和扩展的影响机理。

1 材料与方法

原位拉伸样品取自“铝热反应熔化法”制备出的 304 奥氏体不锈钢块体材料^[5], 将铸态 304 奥氏体不锈钢在 1 000 °C 下去应力退火 0.5 h (记为: 304-1 000 °C-0.5 h), 利用电火花切割铸件获得原位拉伸试样 1. 然后将铸态块体 304-1 000 °C-0.5 h 在 1 000 °C 下变形量为 40% 的条件下轧制开坯, 然后降温至 700 °C 下进行变形量为 80% 的轧制 (记为: 304-1 000 °C-40%-700 °C-80%) 从轧制板材切割获得原位拉伸试样 2. 接下来, 再将 304-1 000 °C-40%-700 °C-80% 轧制薄板在箱式电阻炉中经 1 000 °C × 1 h 固溶处理 (水冷) (记为: 304-1 000 °C-40%-700 °C-80%+1 000 °C-1 h), 切割获得原位拉伸试样 3.

通过电火花切割将试样制成狗骨头形状, 标距部分尺寸为 0.5 mm × 3.5 mm × 4 mm. 由于裂纹的扩展路径往往事先难以确定, 在试样工作部分加工出一个半径约为 0.8 mm 的缺口, 具体尺寸如图 1 所示. 再使用从粗到细的砂纸研磨, 这样可以改善试样表面粗糙度, 减小线切割加工痕迹对实验结果的影响. 最后采用丙酮去油并用酒精清洗. 原位拉伸试样中, 缺口作为预置裂纹源可控制裂纹萌生部位, 试样表面经抛光并将工作部分其中一面用 HCl (45 mL) + FeCl₃ (10 g) + H₂O (60 mL) 溶液侵蚀 30 s 以显示出晶界, 可得到清晰的金相显微观测图像。

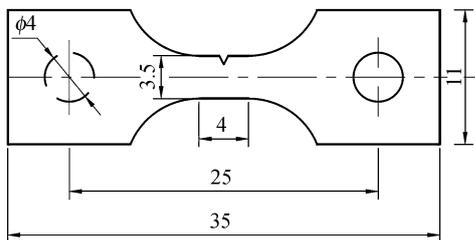


图 1 试样尺寸示意图 (mm)

Fig.1 Schematic diagram of sample dimension (mm)

原位拉伸实验是在 FEI Quanta 450 场发射扫描电镜上加载 Deben Microtest 2 kN 的原位拉伸台上进行, 实验条件为室温, 拉伸速率为恒定速率 0.2 mm/min, 整个过程采用计算机自动记录, 试样拉伸至断裂时停止, 试样夹持方式如图 2 所示, 试样拉断后采用 SEM 观察断口形貌。

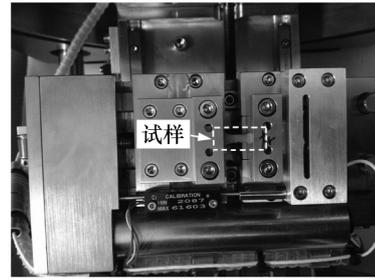


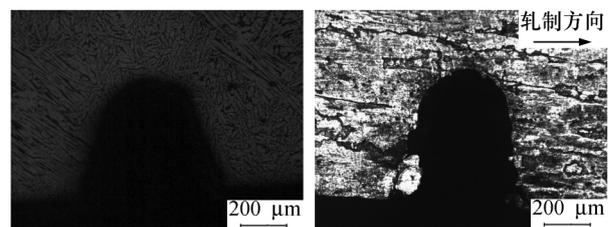
图 2 试样夹持方式

Fig.2 Clamping mode of specimen

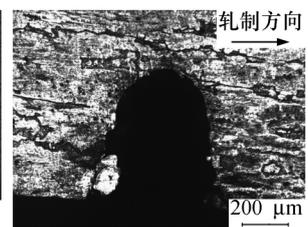
2 结果与讨论

2.1 金相组织及力学性能分析

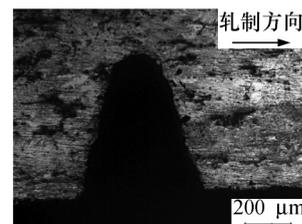
3 种试样金相组织如图 3 所示. 从试样 1 中可观察到, 灰白色基体为奥氏体相, 黑色条带状花纹为铁素体相, 奥氏体基体与铁素体嵌体之间的相界较明显. 经大变形量轧制后试样 2 中铁素体和奥氏体都沿轧制方向拉长了, 铁素体拉长后与奥氏体相相互平行. 轧制后的组织中夹杂物数量很少, 这是因为一些夹杂物在轧制过程中破碎消失, 细小晶粒的铁素体分布在奥氏体晶界处起到沉淀强化的作用, 对强度的提高也是一种影响. 固溶后试样 3 中, 细小的铁素体嵌体部分连成一片, 相界更加模糊. 众所周知, 经过固溶处理后采用水冷方式, 可得到硬度较高的不锈钢材料. 这是因为加热后材料表面温度较高, 在突然遇到冷却介质后表面温度急剧下降变冷收缩, 这种收缩使得材料表面产生极大的压应力, 而此时材料内部温度仍然较高, 由于内部冷却速度较慢, 所以内部收缩速度小于表面, 使得内部受到拉应力。



(a) 试样 1



(b) 试样 2



(c) 试样 3

图 3 不同试样的金相组织

Fig.3 Metallographic structure of different specimens

这种应力的形成会使试样表面硬度有所增加,力学性能得到一定改善,所以固溶处理后试样 3 有更好的耐腐蚀性能,固溶后水冷比空冷获得的表面硬度更高,而且表面有残余压应力,故经浸蚀后晶界不明显。

图 4 为由“铝热反应熔化法”制备出的试样的工程应力-应变曲线,试样的均匀伸长率随试样平均晶粒尺寸的增大而变大,主要因为相对于纳米晶颗粒,位错在微米晶中更容易滑移。

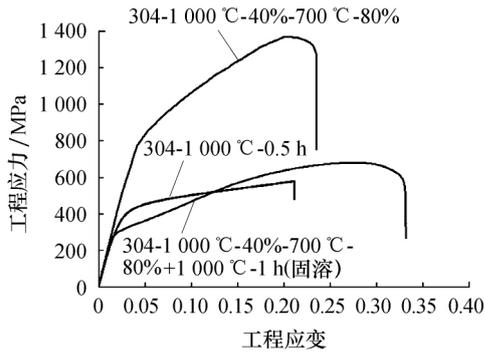


图 4 不同试样的单向拉伸工程应力-应变曲线

Fig.4 Engineering stress vs strain curves of mono directional tension of different specimens

经固溶后试样 3 的强度急剧下降,延伸率增加非常明显,此时已经失去纳米/微米晶复合的结构,拉伸性能也发生了很大变化,延伸率得到很大的回复,可以看出在同一拉伸速率的情况下,试样 2 的屈服强度是试样 1 屈服强度的近 2.8 倍,试样 2 的抗拉

强度是试样 3 抗拉强度的近 2 倍,双尺度结构不锈钢在保持高强度的同时断裂延伸率还保持在 15.8%。

退火处理和轧制加工是提高材料力学性能最常用的 2 种方法,一般情况下,退火处理很难同时提高材料的强度和塑性,获得高强高塑的材料,奥氏体不锈钢不能通过热处理达到强化,但塑性变形可导致加工硬化^[9],经不同温度和轧制变形量热处理后获得不同状态的纳米晶+微米晶呈双峰分布组织的 304 奥氏体不锈钢,总体来说,3 种试样的性能均高于 GB/T 1220—2007^[10]中对 304 不锈钢板材的要求。

2.2 裂纹萌生与扩展

对于试样 1,当外加应力为 615 MPa 时,图 5a 所示为试样产生启裂源,微裂纹开始扩展;在第一个微裂纹裂纹 1 扩展的同时,如图 5b 所示,在试样缺口的另一边产生一个新的启裂源裂纹 2,图 5c、d 中 2 个微裂纹同时扩展;在 5e 中裂纹裂纹 1 基本停滞不扩展,裂纹裂纹 2 快速扩展成为主裂纹;同时,随着形变的继续,图 5f 中裂纹在应力集中区域形核并迅速扩展,在裂纹裂纹 2 上方开始出现多个微裂纹,裂纹萌生、聚合并长大;图 5g 为在裂纹裂纹 2 扩展的过程中,在距裂尖不远的上方、某些应力易于集中的位置(例如由于腐蚀或其他原因而产生的小坑)萌发出一些新的裂纹,然而之后这些裂纹还与主裂纹相连接,继续沿着主应力最大的方向扩展;随着载荷的持续加载,这些微裂纹与主裂纹连通,直至如 5h 中所示,试样彻底断裂。

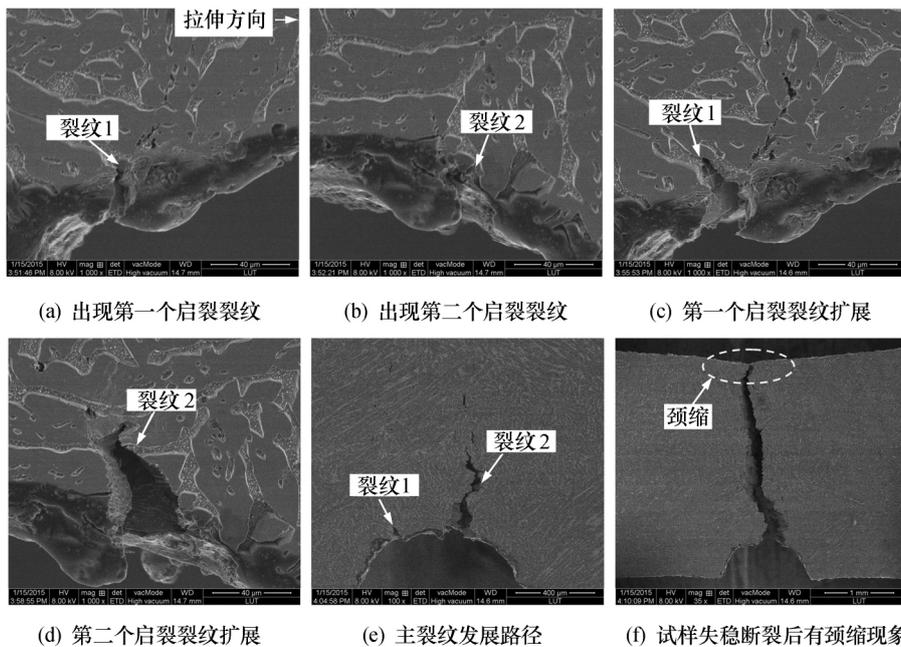


图 5 试样 1 中裂纹的萌生与发展

Fig.5 Initiation and propagation of cracks in specimen 1

对试样 2,如图 6a 所示,此时拉应力为 1 246 MPa 时,预制缺口正下方出现裂纹源,将裂纹源放大 2 000 倍后发现有多处微裂纹存在.微米晶相与纳米晶相之间的性能差异导致晶界之间结合力减弱,同时两相变形抗力不等,在外加应力作用下,因变形程度不同产生附加应力导致裂纹产生.微裂纹或微孔会在外加应力作用下不断增殖增大,间隔断裂后贯通连接而向前扩展.微裂纹的形成使得试样内部增加了新的应力集中并在微裂纹尖端产生较集中的塑性变形,这又加速了新的微孔开裂、长大并与微裂纹的连通.主裂纹继续向前扩展时,也会与其尖端的微裂纹相互连通而继续向前扩展.图 6b 为继续施加拉应力至 1 307 MPa 时,启裂源继续开裂,2 个微裂纹

连通后,从预制缺口处启裂,发展成为主裂纹裂纹 1,裂纹发展方向基本垂直于轧制方向,此时其他微裂纹基本停滞扩展.这是因为微米晶与纳米晶界面有利于微裂纹的形成,微米晶产生的塑性变形能够减弱裂纹附近的局部应力集中,减缓裂纹扩展.图 6c 当拉应力为 1 244 MPa 时,在主裂纹裂纹 1 旁边产生一个新的裂纹源裂纹 2.图 6d 中,当拉应力降低至 1 202 MPa 时,裂纹 2 迅速发展,且裂开方向与拉伸轴呈 45°角.主裂纹裂纹 1 在经过夹杂后,裂纹尖端发生拐弯与裂纹 2 联通并发展成为新的主裂纹,这里还观察到二次裂纹的产生.图 6e 为当拉应力为 1 147 MPa 时,裂纹继续扩展,直至断裂.图 6f 为试样彻底断裂后的形貌,可明显观察到试样发生颈缩.

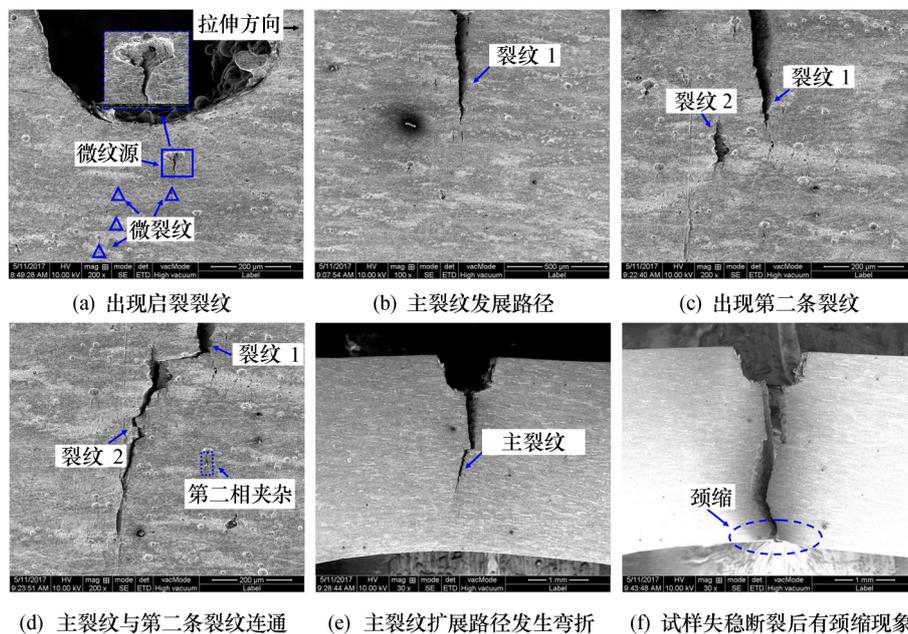


图 6 试样 2 中裂纹的萌生与发展

Fig.6 Initiation and propagation of cracks in specimen 2

试样 3 的原位拉伸裂纹形成过程如图 7 所示,随着载荷的增加,裂纹逐渐张开,最后材料失稳断裂.变形之前样品表面平整无缺陷.当拉伸应力作用于样品上时,样品缺口位置发生应力集中,当拉应力超过试样屈服强度 278 MPa 之后,在第二相夹杂处导致试样产生启裂源,如图 7a 中所示.图 7b 是将图 7a 中标识 A 处的启裂源放大 1 000 倍后观察到的形貌.图 7c 中,主裂纹的扩展路径与拉伸应力的方向夹角大于 45°,近似垂直于拉伸方向.一般情况下,金属材料拉伸断裂时,沿 45°截面方向断裂而不会沿垂直截面的方向断裂,原因在于材料在变形过程中发生了滑移.将裂纹尖端放大至 500 倍,可以看到裂纹尖端附近有很多微小孔洞形成,如图 7d 所示.

将裂纹尖端再放大至 2 000 倍,可以观察到如图 7e 中主裂纹尖端有塑性变形区,预制缺口尖端通过塑性变形缓解应力集中.某些粗大第二相尖端开始与基体分离,出现沿加载方向拉长的微孔,并且微孔也随着拉伸应力的增加而长大.金属中杂质原子会显著增加临界分切应力,工业合金中,这种固溶强化能使屈服强度提高若干倍,这要归功于杂质原子对位错的钉扎作用.如图 7f 所示,试样在完全断裂后可以观察到颈缩.动态拉伸原位观察的结果显示,裂纹源主要产生在预制缺口的前端,是通过与基体微裂纹相连接所形成的.

由于 304 奥氏体不锈钢的堆垛层错能较低,导致位错和层错同时积累,使其更有效地应变硬化.而

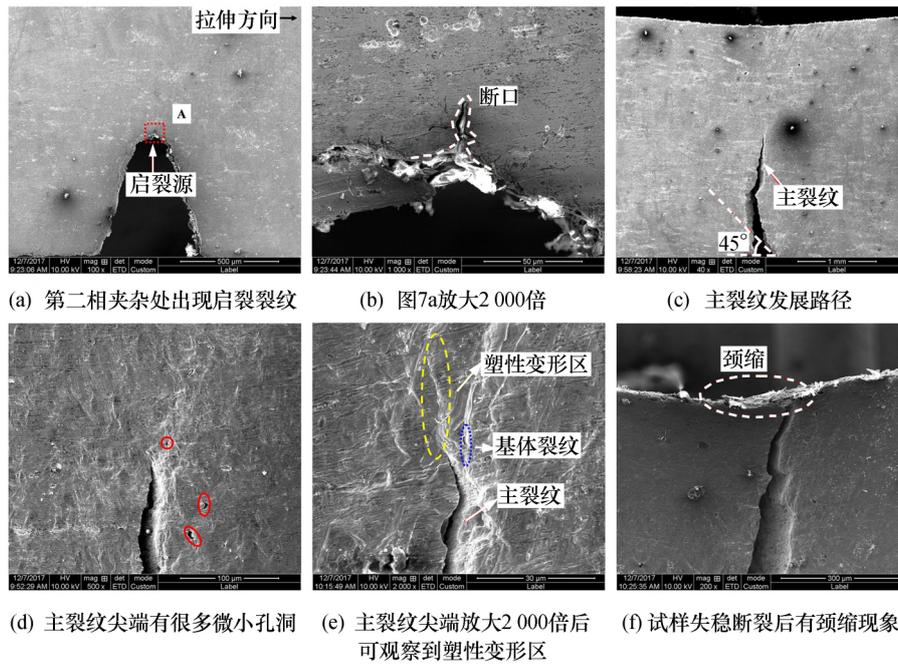


图 7 试样 3 中裂纹的萌生与发展

Fig.7 Initiation and propagation of cracks in specimen 3

低层错能奥氏体不锈钢可通过大量的晶粒细化生产高强度的金属材料, 试样 2 所具有的双尺度结构中纳米晶的体积分数高达 55%, 纳米晶晶粒细小, 导致了其在受到拉应力下会在多处启裂, 且裂纹扩展速度较快, 但采用双尺度复相结构后由于裂纹快速贯穿纳米晶区域抵达微米晶区域后, 裂纹尖端受到抑制并发生钝化, 借助位错增殖才能通过微米晶区域, 因而减缓了裂纹扩展。

通过对拉伸过程的原位观察, 发现在开始形成破坏性裂纹前, 预制缺口尖端通过塑性变形缓解应力集中. 随着拉伸载荷的不断增大, 预制缺口尖端发生塑性变形已不足以抵御应力集中, 达到塑性变形极限, 裂纹开始在宽度较大的滑移带处形核. 在应力场作用下, 裂纹尖端会产生塑性区, 内应力最大处会萌生新的微裂纹或微孔洞, 根据 Taylor 强度理论, 材料的应变硬化主要来源于粗晶和纳米晶中位错的滑移。

发现裂纹萌生与扩展过程表现为 4 个过程: 微裂纹萌生于组织中的第二相夹杂处, 邻近的微裂纹连接形成小裂纹; 沿晶断裂与穿晶断裂模式共存, 多处形成的小裂纹彼此连接并形成较长裂纹; 当主裂纹遇到破碎的第二相夹杂时, 扩展受阻, 裂纹尖端发生钝化并在其前沿区域形成剪切带, 主裂纹尖端有塑性变形区; 剪切带深化并开裂, 主裂纹沿着深化的剪切带穿过基体并继续扩展, 最终导致试样断裂。

2.3 断口分析

强度试验的结果只是试样变化的宏观体现, 其

微观特征还需借助拉伸断口形貌来揭示. 试样拉断后, 切取断口在扫描电镜下观察断口形貌, 如图 8 所示. 图 8a 中, 试样 1 断裂时有很多启裂源, 随着载荷的增加, 各个启裂源都扩展, 最后相互连接引起最终断裂. 从图中看出, 宏观断口无明显塑性变形, 断口外形整体粗糙、不平整, 颜色灰暗, 韧窝尺寸不均匀、深浅不一, 数量不多, 有大面积河流状花样, 放大后局部有唇形断裂. 材料断裂方式为韧脆混合断裂, 以韧性断裂为主. 经能谱分析得知, 图 8a 中夹杂物为 Al_2O_3 、析出相为 FeNiCrAl, 它们都是裂纹萌生的择优位置. 退火处理后发现试样抗拉强度已达到预先设计的要求, 但伸长率需要进一步设计实验方案来提升. 图 8b 中, 试样 2 断口整体颜色呈暗灰色, 可见较为清晰的层状分布, 韧窝形核位置较多, 韧窝较细小且浅, 韧窝边界较清晰, 这里有 2 种尺度的韧窝, 一种是小而浅的韧窝, 直径约为一两百纳米; 另一种为大而深的韧窝, 尺寸为 $3\sim 4\ \mu m$. 将断口放大至 2 000 倍时, 可观察到断口布满韧窝且多为等轴韧窝, 但都较为细小, 表明材料具有良好的塑性. 在放大 500 倍下, 可观察到分布有断裂的增强相, 其主要成分为硬质 Al_2O_3 . 放大 1 000 倍时可观察到, 局部有准解理面, 因此断裂方式为韧性断裂与脆性断裂混合断裂方式. 图 8c 中, 试样 3 断口表面呈纤维状, 颜色灰暗, 韧窝数量少, 但都较大且深, 平均直径约为 $5\ \mu m$, 在部分韧窝底端能发现粗大第二相, 在细小韧窝中几乎没有发现第二相化合物的存在, 是典型的韧性断裂断口。

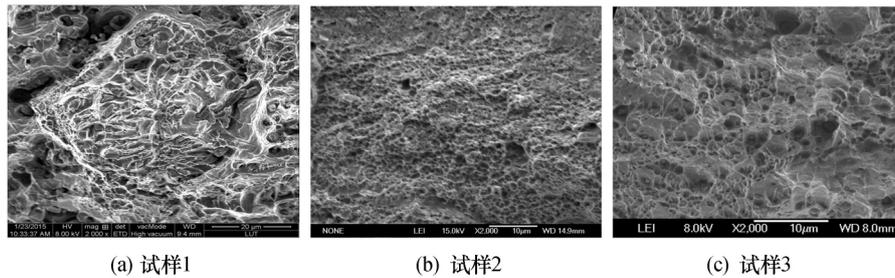


图 8 不同试样的拉伸断口形貌

Fig.8 Morphology of tensile fracture of different specimens

2.4 双尺度结构对断裂行为的影响

对于纳米晶体材料,裂纹原则上是在晶界处产生,然后随着施加载荷增加而传播.在试样 1 和试样 2 中,纳米/超细晶粒相中形成的纳米/微裂纹可以再进行在变形过程中被粗晶粒阻止,导致更多的纳米/微米裂纹,直到形成主导裂纹并导致失效.对于试样 3,开始形成破坏性裂纹之前,预制缺口尖端通过塑性变形缓解应力集中.但随着拉伸应力的不断增大,预制缺口尖端发生的塑性变形已经不足以缓解应力集中,达到材料塑性变形极限,裂纹开始在宽度较大的滑移带处形成,因变形程度不同而产生附加应力最终导致裂纹产生.微裂纹或微孔会在外加应力作用下不断增殖增大,间隔断裂后贯通连接而向前扩展.微裂纹的形成使得试样内部增加了新的应力集中并在微裂纹尖端产生较集中的塑性变形,这又加速了新的微孔开裂、长大并与微裂纹的连通.主裂纹继续向前扩展时,也会与其尖端的微裂纹相互连通而继续向前扩展.

3 结论

1) 在试样 1、2 中,由于纳米晶和微米晶的结构及性质的差异,晶界结合力较弱,在外加载荷下容易产生沿晶断裂.试样 3 中,微米晶相之间彼此晶界结合力较强,在外加载荷下穿晶断裂与沿晶断裂模式共存.

2) 轧制可使得材料晶粒细化、组织更加致密.由于微米晶可存储位错,纳米晶不能存储位错,所以裂纹在微米晶中扩展受到阻碍速度较慢,纳米晶由于晶粒细小且不能存储位错,裂纹在纳米晶中扩展的速度较快且裂纹前段垂直于拉应力方向扩展.

3) 在双尺度分布材料中,裂纹一般在纳米晶基体中萌生、扩展.在拉伸载荷作用下,微裂纹生成于微米晶和纳米晶间的晶界并向微米晶区域蔓延,直至贯穿微米晶区域或在微米晶区域发生钝化.当带

裂纹的试样受到外加载荷时在裂纹尖端将发生应力集中,位错在裂纹尖端发射并滑移到达晶界形成堆积会产生背应力.微裂纹并未引发材料严重失效,反而是微裂纹尖端沿滑移面发射位错,位错堆积在晶界处并由此产生了背应力,背应力反向作用于位错源,阻碍了类似位错的发射堆积过程,导致材料加工硬化,从而增强了材料整体的延展性.

参考文献:

- [1] 刘旭. 纳米晶 304 不锈钢力学性能的研究 [D]. 沈阳: 东北大学, 2013.
- [2] 刘鸣放, 刘胜新. 金属材料力学性能手册 [M]. 北京: 机械工业出版社, 2011.
- [3] SHENG Jie, SU Jiaqiang, LA Peiqing, *et al.* Progress of in-situ study on mechanical properties for micro/nano-structured alloy [J]. *Journal of Nanoelectronics and Optoelectronics*, 2018, 13 (5): 637-648.
- [4] 胡锋, 周立新, 张志成, 等. 微纳结构超高强度钢的现状与发展 [J]. *中国材料进展*, 2015, 34(增刊): 595-604.
- [5] SHENG Jie, LI Junchen, LA Peiqing, *et al.* Investigating the tensile properties of micro-nanostructured 304 stainless steel with SEM and in-situ tension [J]. *Science of Advanced Materials*, 2017, 9(6): 1020-1027.
- [6] 刘英光, 琚荣源, 李慧君, 等. 纳米晶双峰材料的本构行为 [J]. *材料研究学报*, 2015, 29(12): 889-893.
- [7] MA En. Instabilities and ductility of nanocrystalline and ultrafine-grained metals [J]. *Scripta Materialia*, 2003, 49(7): 663-668.
- [8] LA Peiqing, WEI Fuan, LU Xuefeng, *et al.* Effect of annealing temperature on microstructure and mechanical properties of bulk 316L stainless steel with nano- and micro-crystalline dual phases [J]. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 2014, 45(11): 5236-5244.
- [9] 陈波, 高明, 马颖澈, 等. 冷轧对含少量 Mo 的 302 不锈钢组织和性能影响 [J]. *材料研究学报*, 2010, 24(3): 278-282.
- [10] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. 不锈钢棒: GB/T 1220—2007 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2012.