

特约专栏

三维 X 射线衍射技术与工程材料研究

王乐耘, 朱高明

(上海交通大学材料科学与工程学院 轻合金精密成型国家工程研究中心, 上海 200240)

摘要: 第三代同步辐射光源可以产生高能 X 射线, 实现对服役条件下工程材料内部晶体结构的原位无损表征。三维 X 射线衍射(3DXRD)是一种基于同步辐射技术的新兴表征技术, 其采用单色高能硬 X 射线对多晶材料沿不同方向采集衍射信号, 得到材料内部晶粒的晶体取向、空间位置、晶内局部应力张量等信息。当结合原位实验对材料进行 3DXRD 分析时, 可以得到各晶粒状态的动态演化。该技术已经在欧洲的 ESRF 光源、美国的 APS 光源、日本的 SPring-8 光源以及德国的 DESY 光源等的衍射线站应用并向用户开放。综述了 3DXRD 技术的基本原理及其在工程材料研究中的应用案例, 包括测量材料内部晶粒取向的演化、晶粒尺度应力测量、六方晶系材料变形机制研究、材料失效过程研究、晶体塑性有限元模型的验证等。最后基于 3DXRD 技术的现状, 对其发展方向进行了展望。

关键词: 同步辐射; 三维 X 射线衍射; 工程材料; 原位实验; 晶体取向

中图分类号: O434. 19 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-3962(2021)02-0081-09

Three-Dimensional X-ray Diffraction Technique for the Study of Engineering Materials

WANG Leyun, ZHU Gaoming

(National Engineering Research Center of Light Alloy Net Forming, School of Materials Science and Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Abstract: The third-generation synchrotron radiation source can generate high-energy X-rays to realize *in-situ* non-destructive characterization of the internal crystal structure of engineering materials under service conditions. As an emerging characterization technique based on synchrotron radiation, three-dimensional X-ray diffraction (3DXRD) technique uses monochromatic high-energy hard X-rays to collect diffraction signals along different directions from polycrystalline materials to obtain the crystal orientation, spatial position, and local stress tensor of the grains inside the material. When the 3DXRD technique is combined with *in-situ* experiments, the dynamic evolution of the state of each crystal grain can be obtained. This technique has been successfully implemented in synchrotron radiation facilities such as ESRF in Europe, APS in the United States, SPring-8 in Japan and DESY in Germany. This article reviews the working principles of 3DXRD and its applications in engineering materials research, including measuring the evolution of grain orientation in materials, measuring grain-scale stress, studying the deformation mechanisms of hexagonal materials, understanding material failure, and verification of crystal plasticity finite element models. Finally, based on the status of 3DXRD, its development direction is envisioned.

Key words: synchrotron radiation; three-dimensional X-ray diffraction (3DXRD); engineering materials; *in-situ* experiment; crystal orientation

1 前言

工程材料, 例如金属和陶瓷, 构成了现代制造业的基础。这些材料的物理、化学和机械性能在很大程度上

取决于它们在晶粒尺度上的微结构及其相互作用。因此, 对材料晶粒尺度微结构的表征成为了联系材料设计与服役评价的关键桥梁。传统的基于电子显微学的表征方法(如电子背散射衍射)只能用于探测材料表面的晶粒, 无法研究材料内部的绝大多数晶粒及它们之间的晶界。此外, 电镜表征需要在真空环境下对样品进行操作, 限制了各种原位实验的可能性。因此, 迫切需要发展一种方法来实现材料内部晶粒的三维、无损、定量乃至动态的微结构表征^[1, 2]。

收稿日期: 2020-12-17

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(51671127)

第一作者: 王乐耘, 男, 1985年生, 研究员, 博士生导师,

Email: leyunwang@sjtu.edu.cn

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.202012022

同步辐射是近年来迅速发展的一种新型材料表征手段,尤其在近 20 年里,随着第三代同步辐射装置的兴起得到了长足的发展。同步辐射装置利用加速器使电子以接近光速的速度在周长为数百米的储能环里作圆周运动,在沿储能环分布的磁场作用下这些电子失去部分能量,以 X 射线的形式释放,通常被称为同步辐射 X 射线。与常规实验室 X 射线相比,同步辐射 X 射线有许多优点,包括高能量、高亮度、高准直性等^[3, 4]。高能量的 X 射线可以穿透数百微米乃至毫米级别厚度的宏观样品,其开放的实验环境为各种原位实验提供了极大的空间。

目前,同步辐射 X 射线衍射是研究晶体材料的重要手段,但普通的多晶衍射方法只能得到材料内部所有晶粒的平均信息^[5]。使用白光劳厄微束衍射,例如差分孔径 X 射线成像(differential aperture X-ray microscopy, DAXM)能够表征单个晶粒,但扫描成像速度较慢^[1]。近年来,欧美的一些学者提出了一种三维 X 射线衍射(3DXRD)技术,可以实现对块体材料内部单个晶粒的解析。该技术首先由丹麦 Risø 国家实验室提出^[6, 7]。3DXRD 的核心思路是从不同角度采集样品的衍射信息,然后综合分析所有的衍射谱,解析出材料内部的晶粒结构信息。3DXRD 的工作原理与 X 射线断层扫描(XCT)类似,但前者采集的是衍射信号,而后者采集的是 X 射线吸收谱。3DXRD 可以与各种原位实验配合,来研究工程材料内部晶粒的演化^[8, 9]。由于 3DXRD 实验往往需要使用能够穿透毫米厚度样品的高能 X 射线,因此 3DXRD 又被称为高能 X 射线衍射成像(high energy diffraction microscopy, HEDM)。与 DAXM 相比, HEDM 的空间分辨率要低一些,但实验速度会快很多,便于开展各种原位实验。

3DXRD 技术在欧洲的 ESRF 光源、美国 APS 光源、日本 SPring-8 光源以及德国的 DESY 光源的几条线站已经实现并面向用户开放。

2 三维 X 射线衍射基本原理

图 1 展示了 3DXRD 的技术原理^[10]。由扁平状狭缝汇聚的高能 X 射线以透射方式与样品作用,在另一端以高分辨二维探测器记录衍射信号。实验过程中,样品绕 Z 轴以步进方式旋转(步长为 1° 或更小),在每个旋转角度分别记录样品产生的二维衍射谱。3DXRD 技术采用单色 X 射线,因此这些衍射图谱上的衍射斑会分布在若干个同心圆环(德拜环)上。由于样品的旋转,样品中的每一个晶粒的各个 $\{hkl\}$ 晶面都有机会在不同转动角度下产生衍射信号。由于同步辐射产生的高能 X 射线可以穿透毫米级的各种金属(如镁、钛、钢、镍等)^[11-14],所以可以对绝大多数工程材料块材进行分析。

在获得不同旋转角度(ω)下的二维衍射图谱后,利用专用算法及软件,例如 FABLE^[15]、MIDAS^[16]等对这些二维衍射谱进行寻峰、几何变换、衍射峰逆向标定等操作,可以分离出每个晶粒所对应的衍射峰,进而根据衍射峰的位置及旋转角度 ω 来分析这些晶粒的晶体取向、空间位置、晶内局部应力张量等信息。

3DXRD 实验可与原位拉伸实验结合。实验中,对样品以步进方式沿图 1 中的 Z 轴进行拉伸;在每一拉伸步后暂停引伸计,然后进行 3DXRD 的数据采集(绕 Z 轴旋转并采集衍射信号);之后进行下一步的拉伸及 3DXRD 数据采集,直到实验结束。通过对不同应变下的 3DXRD 数据分析,可以得到晶粒的晶体取向和晶内局部应力随加载过程的演变。

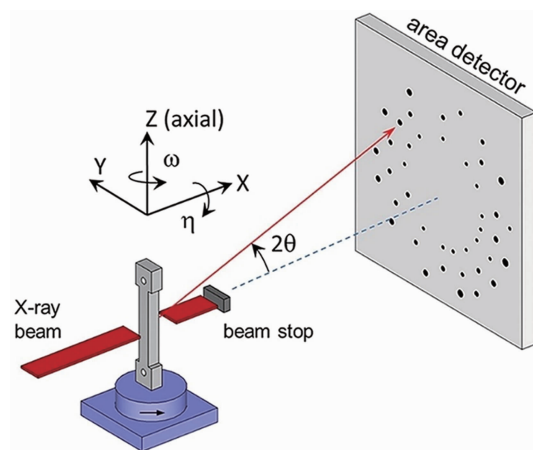


图 1 原位 3DXRD 技术装置示意图^[10]

Fig. 1 Schematic of the in-situ 3DXRD experiment^[10]

利用 3DXRD 方法可以方便地对材料的宏观和微观结构进行分析。图 2 为通过 3DXRD 得到的 Ti-7Al 样品中某一截面内的晶粒取向及位置信息(X 射线能量: 65 keV, 束斑尺寸: $2\text{ mm} \times 1.7\text{ }\mu\text{m}$), 该截面面积为 $1.5\text{ mm}(x) \times 1.5\text{ mm}(y) \times 0.56\text{ mm}(z)$, 其中 z 轴为拉伸方向^[17]。该材料为六方晶体结构, 晶粒尺寸约为 $100\text{ }\mu\text{m}$ 。通过对样品 z 轴和晶粒的 c 轴夹角 θ_z 的计算, 发现大部分晶粒 θ_z 较大, 即这些晶粒的 c 轴与拉伸方向近于垂直, 符合钛合金挤压棒材结构的特点。

图 1 所示的是远场(far field) 3DXRD 模式, 探测器距离样品在 $300 \sim 1500\text{ mm}$ 范围内, 也是较为常用的模式。另外一种被称为近场(near field) 3DXRD 模式, 探测器被放置在离样品只有几毫米的位置。近场 3DXRD 可以重构得出晶粒的三维形貌信息, 其空间分辨率可低至 $1.5\text{ }\mu\text{m}$ ^[18, 19]。近场 3DXRD 主要应用于高分辨三维晶粒形貌、晶体取向等研究。

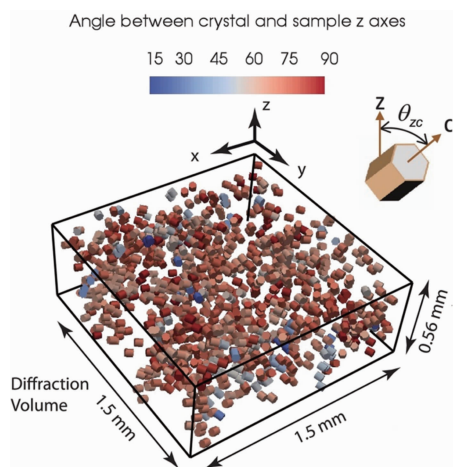


图2 3DXRD 实验获得的 Ti-7Al 多晶样品的晶粒取向与位置^[17]

Fig. 2 Grain orientations and positions of a polycrystalline Ti-7Al sample characterized by 3DXRD experiment, the hexagonal unit cells represent the grain orientations, which are colored according to the angle between the grain and the sample z-direction^[17]

3 3DXRD 在工程材料研究中的应用

3.1 晶体取向的演化

工程材料在变形时通常伴随着晶粒的晶体取向变化, 3DXRD 原位实验是理想的研究手段。Poulsen 等采用 3DXRD 技术研究了 AA1050 多晶纯铝的塑性变形过程^[20, 21]。图 3a 中展示了其中一个晶粒的某个 $\{hkl\}$ 晶面的衍射斑变化(X 射线能量: 55 keV, 束斑尺寸: $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$, 角分辨率: 0.2 mrad), 在不同的应变下 (0% ~ 6%), 衍射斑质心在 ω 和 η 方向上发生了位移。通过分析所有衍射斑的位置改变, 可以计算晶粒晶体取向随应变的旋转。该研究分析了 95 个晶粒在拉伸过程中的晶体取向变化。在图 3b 的反极图 (IPF) 中, 圆点代表每个晶粒的最终取向, 短线另一端代表晶粒在塑性变形前的初始取向。所有晶粒在反极图中的位置可分为 4 个区域 (①~④)。他们比较了实验测得的晶粒晶体取向旋转方向和用经典的 Sachs 模型计算得到的晶粒晶体取向理论旋转方向 (图 3c), 结果表明, 仅区域①中的晶粒晶体取向沿模型预测方向旋转, 而其他 3 个区域中的晶体取向旋转方向与模型有较大差异。该工作表明, 多晶材料在晶粒尺度上的变形十分复杂, 一些经典的力学模型只是一种简单的近似, 无法完全拟合材料内部的实际演变。

3.2 晶粒尺度应力测量

工程材料变形时, 不同晶粒内的实际应力状态往往与根据外部载荷除以样品截面尺寸计算得到的宏观应力有较大出入。这是由于, 不同晶粒的晶体取向、晶粒尺寸以及相邻晶粒的相互作用等均会对该晶粒的变形方式产生影响, 进而改变各晶粒内的局部应力。

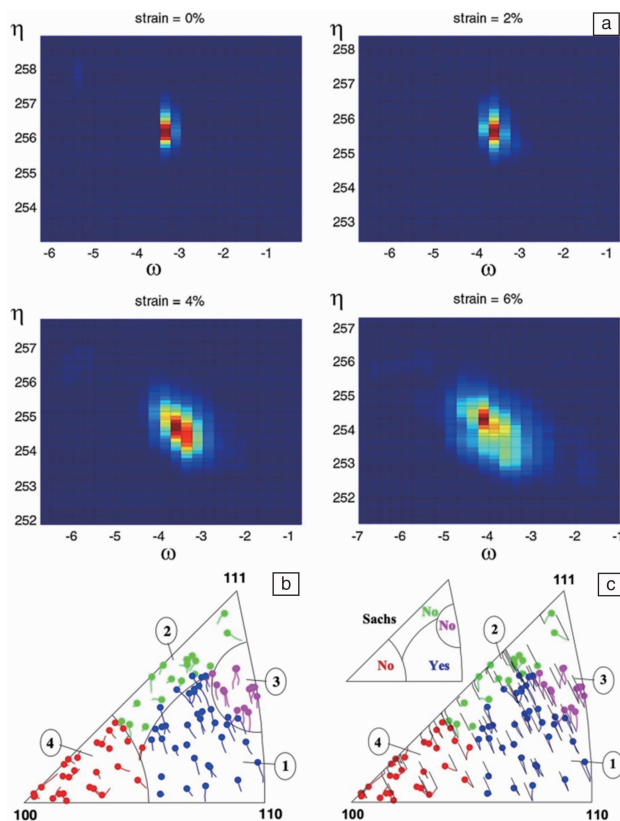


图3 通过原位 3DXRD 对 AA1050 纯铝中晶粒的晶体取向演化的表征^[21]: (a) 不同应变下某个衍射斑的变化, (b) 拉伸过程中各晶粒晶体取向在反极图中的演化, (c) 实验及 Sachs 模拟得到的晶体取向旋转的对比

Fig. 3 Monitoring the grain orientation rotation in AA1050 pure aluminum by *in-situ* 3DXRD^[21]: (a) position and shape change of a diffraction peak at different strain, (b) grain orientation rotation during tensile deformation shown in an inverse pole figure (IPF), (c) comparison of grain orientation rotation between the experimental result and the Sachs model simulation

通过 3DXRD 实验, 可以在加载条件下对样品中不同晶粒的应力状态进行计算。作者等借助美国 APS 光源 1-ID 线站的 3DXRD 实验装置表征了纯钛在原位拉伸时不同晶粒的应力状态的演变^[22], 样品的横截面为 $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ 。图 4a 为拉伸变形前通过近场 3DXRD 得到的某个截面上的晶粒分布图, 显示该材料由晶粒尺寸约为 $100 \mu\text{m}$ 的等轴晶组成。该截面上的晶粒的晶体取向如图 4b 中的 $\{0001\}$ 极图所示。图 4c 和 4d 显示的是在变形前和拉伸应变为 0.31% 时, 通过远场 3DXRD 分析得到的该截面上的晶粒的质心位置及 Mises 应力分布。远场 3DXRD 使用的 X 射线能量为 65.4 keV, 束斑尺寸为 $100 \mu\text{m} \times 1.5 \text{ mm}$, 在样品绕 z 轴旋转时, 整个横截面始终在束斑照射下, 有利于对处在样品表面的晶粒的标定。样品绕 z 轴以 1° 的步长旋转 140° , 在每 1° 记录一张衍射

谱,从而获得远场 3DXRD 数据并得到晶粒的晶体取向、质心位置及应力信息。结果显示,样品在变形前,其中晶粒的应力分布已经有所差异,不同晶粒的 Mises 应力约在 50~200 MPa,明显大于预加载的宏观应力的数值(19 MPa)。这表明该样品在初始状态下就存在残余应力,可能是由于热加工后冷却时钛的热膨胀系数的各向异性引起的。拉伸应变为 0.31% 时,这些晶粒中的 Mises 应力普遍增大(如图 4d 所示),并且不同晶粒之间的差异进一步变大。晶粒间的应力差异与每个晶粒内部的变形过程有关。

运用类似方法,一些学者研究了其它钛合金在加载-卸载^[17]以及室温蠕变^[23]后的残余应力分布,发现不同晶粒中的残余应力也往往有较大差异。

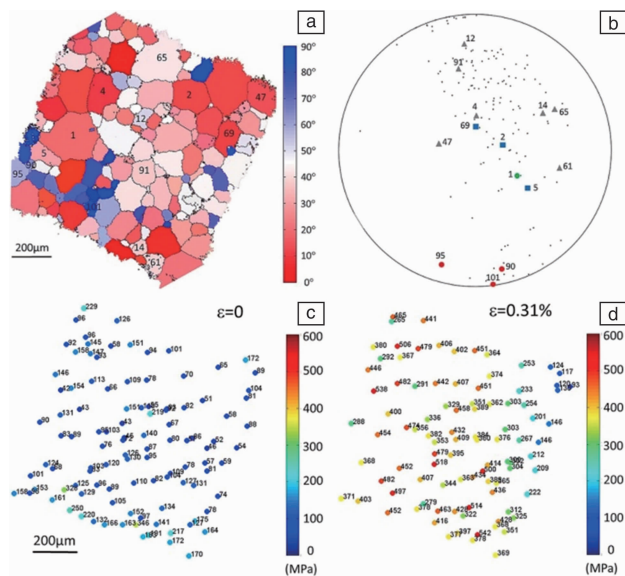


图 4 通过 3DXRD 分析多晶纯钛拉伸时不同晶粒的 Mises 应力演化^[22]: (a)通过近场 3DXRD 得到的样品某个截面上的晶粒形貌照片; (b)截面上晶粒的晶体取向以 $\{0001\}$ 极图表示;通过远场 3DXRD 得到的样品变形前(c)和拉伸应变为 0.31% 时(d)不同晶粒的质心位置及 Mises 应力分布图,每个晶粒旁的数字代表 Mises 应力值

Fig. 4 Analyzing the von Mises stress (σ_{VM}) evolution in a polycrystalline pure titanium from the 3DXRD data^[22]: (a) Reconstructed grain map from a near-field 3DXRD scan; (b) $\{0001\}$ pole figure generated from the grain orientations; Measured σ_{VM} in different grains before deformation (c) and at the microscopic strain of 0.31% (d) from far-field 3DXRD

远场 3DXRD 能够测量每个晶粒的平均应力(即 type II 应力)。从上面例子中可以看出,在相同的宏观应力(type I 应力)下,不同晶粒的平均应力可以有很大不同。然而,在很多情况下,在每个晶粒内部也存在应力分布的不均匀,即所谓的 type III 应力。普通的远场 3DXRD 方法无法分辨 type III 应力。在近期一项研究中,日本丰田实验室与 SPring-8 光源的 BL33XU 线站合作,发展了一

种扫描 3DXRD 技术(scanning 3DXRD)^[24]。图 5 展示了该实验的装置与结果。他们采用了能量为 50 keV、束斑尺寸为 $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ 的 X 射线微束照射一块低碳钢样品。微束每次照射在一个 $1.2 \mu\text{m} \times 1.2 \mu\text{m} \times 1.2 \mu\text{m}$ 的体素上。在每个位置,样品绕 z 轴以 0.6° 的步长旋转 180° 并记录衍射谱。运用 3DXRD 分析软件可以测量该体素的晶体取向和应力张量。接下来,让样品台在 y 方向和 z 方向分别进行步进扫描,在每一个扫描点进行上述 3DXRD 数据采集,就可以得到扫描区域内所有体素的晶体取向与应力信息,综合后就可以获得晶粒形貌及内部的应力分布。图 5d~5i 所示的是在宏观应变 5.1% 下,晶粒内部的 type II 应力,图 5j~5o 所示的是晶粒内部的 type III 应力。可以看到,一些晶粒内部存在较大的应力分布不均匀性。在某个晶粒中,其 σ_{xx} 分量为 280 MPa,而其内部的体素的 σ_{xx} 分量在 20~470 MPa 的宽阔范围分布。这个例子表明,晶粒内部的 type III 应力是不可被忽略的。

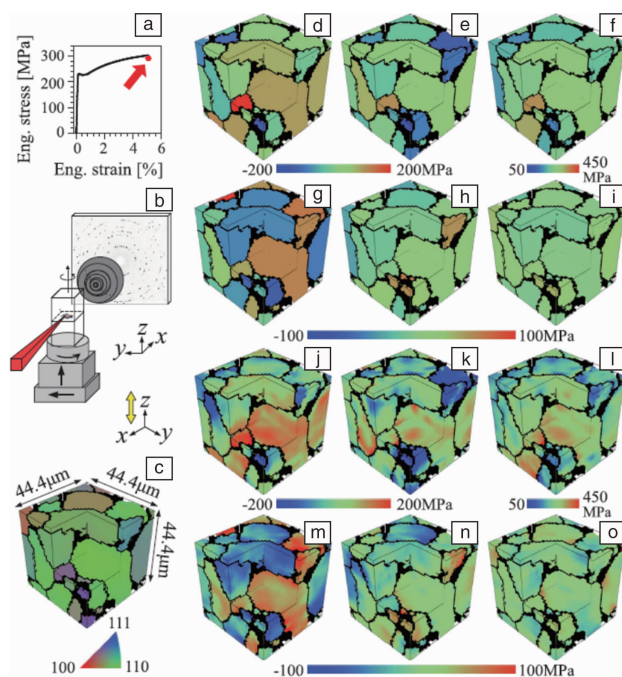


图 5 扫描 3DXRD 的实验示意图及结果^[24]: (a)低碳钢样品的拉伸曲线,拉伸应变为 5.1% 时对样品作表征; (b)扫描 3DXRD 实验装置示意图; (c)扫描体积内的晶粒取向与形貌; σ_{xx} , σ_{yy} , σ_{zz} , τ_{xy} , τ_{yz} , τ_{zx} 6 个分量的 type II 应力分布(d~i)和 6 个分量的 type III 应力分布(j~o)

Fig. 5 Schematic and results from scanning 3DXRD^[24]: (a) In-situ stress-strain curve of a low-carbon steel sample, when tension strain reached 5.1%, the scanning 3DXRD measurement was conducted; (b) Schematic diagram of scanning 3DXRD setup with a conical slit; (c) 3D orientation map, orientation is represented by the inverse pole figure for the tensile direction; 3D stress (type II) maps (d~i) and 3D stress (type III) maps (j~o) of σ_{xx} , σ_{yy} , σ_{zz} , τ_{xy} , τ_{yz} , τ_{zx} stress components

3.3 六方晶系材料变形机制研究

六方晶系材料包括镁、钛、锆等, 它们是汽车、航空航天、核工业等领域的重要工程材料。六方晶系材料的晶体对称性低, 塑性变形时主要变形模式包括基面滑移、柱面滑移、锥面 $\langle a \rangle$ 滑移、锥面 $\langle c + a \rangle$ 滑移、 $\{10\bar{1}2\}$ 拉伸孪晶等。这些变形机制具有不同的临界启动应力 (CRSS), 而这些 CRSS 的数值决定了六方晶系材料的强度与塑性。

测量六方晶系材料滑移及孪晶启动 CRSS 的一种方法是用聚焦离子束 (FIB) 加工出微米或纳米尺度的单晶样品, 然后利用特殊装置对这些微纳样品进行压缩或其它加载^[25, 26], 从表面滑移带或孪晶区域的产生判定滑移或孪晶的启动, 同时从实时应力上计算得到对应变形机制的 CRSS 值。但该方法的样品制备复杂、实验周期长、每次只能测一个晶体取向内的滑移或孪晶。

原位 3DXRD 实验提供了测量六方晶系材料滑移和孪晶启动的 CRSS 的另一条途径。作者等通过原位 3DXRD 分析了纯钛在拉伸过程中材料内部晶粒中的孪晶形核^[10]。实验中选取的初始拉伸样品的横截面为 $1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$, 晶粒为尺寸约 $100\text{ }\mu\text{m}$ 的退火等轴晶。在 APS 1-ID 线站测量了样品从 0 到 3.0% 应变下的远场 3DXRD 数据, 确定了截面上所有晶粒的位置、晶体取向和应力张量。由于应变较小, 大部分晶粒的位置、晶体取向变化不大。如图 6a 所示, 在拉伸应变达到 1.6% 时, 在 $\{0001\}$ 极图上发现了一个新的晶体取向, 通过与其他晶粒的位置和取向差对比后, 确定其为 1# 晶粒中产生的孪晶, 因为两者位置接近, 取向差约为 85° 。根据 1# 晶粒在孪晶形核前一刻的应力张量 (图 6b), 计算得到孪晶形核的 CRSS 约为 225 MPa。在孪晶形核后, 继续追踪了 1# 晶粒和孪晶的应力张量 (图 6b), 发现孪晶中的应力始终比母晶粒低。这表明孪晶界两侧存在显著应力差, 这个现象在其他孪晶中也被观察到^[27]。

原位 3DXRD 实验也可以测量位错启动的 CRSS, 可分为间接测量法和直接测量法。间接测量法是将 3DXRD 测得的数百个晶粒的应力张量在各个滑移系上作投影, 以此作为每个滑移系的“强度”, 根据所有晶粒中各滑移系“强度”的平均值演化, 再结合晶体塑性模型, 可以对各滑移系的 CRSS 值作出估计^[28, 29]。

作者等^[22, 30, 31]发展了通过观察晶粒的晶体取向变化判定滑移系启动的方法, 根据应力张量在启动滑移系上的投影可直接测量 CRSS。室温下镁合金的变形主要由基面滑移实现, 而柱面滑移及锥面滑移的 CRSS 数值一般为基面滑移的数十倍, 这严重降低了材料的塑性变形能力。在镁合金中添加少量固溶稀土元素往往能够显著提高材料的强度与塑性, 其中一个重要机制是固溶稀土元

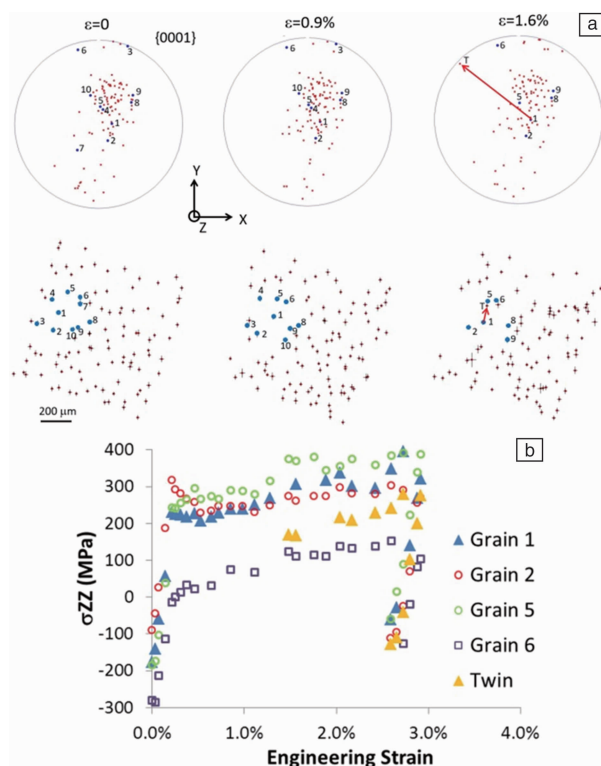


图6 通过原位 3DXRD 研究多晶纯钛中的孪晶形核^[10]: (a) 不同应变下, 探测区域内的晶粒 $\{0001\}$ 的极图以及晶粒位置图; (b) 4 个晶粒以及孪晶的 σ_{zz} 应力分量随宏观拉伸的演化

Fig. 6 Study of a twin nucleation event in a polycrystalline pure titanium using in-situ 3DXRD^[10]: (a) $\{0001\}$ pole figures and grain positions at different strains in the probed volume; (b) Evolution of the σ_{zz} stress component in four grains and the twin

素改变了镁基体中的滑移系及孪晶系的 CRSS。作者等^[31]采用 3DXRD 技术直接测量了 Mg-3% Y (质量分数) 合金基面滑移、柱面滑移和锥面 $\langle a \rangle$ 滑移的 CRSS。实验采用的拉伸样品来自于轧制板材, 晶粒尺寸约为 $50\text{ }\mu\text{m}$, 拉伸轴沿着材料的轧制方向 (RD)。在 APS 1-ID 线站, 试样被逐步加载至 3% 应变, 在每个加载步下, 通过远场 3DXRD 分析在 $1\text{ mm} \times 1\text{ mm} \times 0.1\text{ mm}$ 体积中近 1000 个晶粒的晶体取向、空间位置和应力张量。对每个晶粒, 将其在任一应变下的取向与变形开始前的取向作比较, 可以求得取向差 (disorientation) 以及 c 轴转角 (c -axis misalignment), 如图 7a 所示。

当晶粒内启动柱面滑移时, 晶粒的晶体取向将绕 $[0001]$ 轴旋转, 这类晶粒在塑性变形后其 c 轴转角将保持不变, 而取向差将持续增大。如图 7b 所示, 晶粒 47# 的旋转方式符合柱面滑移的特征, 分析该晶粒在塑性变形开始前各滑移系的分切应力, 获得柱面滑移的 CRSS 为 35 MPa, 如图 7c 所示。当晶粒内启动基面滑移, 晶粒的取向将绕 $\langle 1100 \rangle$ 轴旋转; 当晶粒内启动锥面 $\langle a \rangle$ 滑

移, 晶粒的取向将绕 $\langle 10\bar{1}2 \rangle$ $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ 轴旋转。图 7b 中的 72#晶粒和 24#晶粒分别对应这两种情况。通过对发生上述 3 种滑移的多个晶粒的分析, 确定 Mg-3% Y 合金基面滑移、柱面滑移和一阶锥面 $\langle a \rangle$

滑移的平均 CRSS 值分别为 12, 38 和 36 MPa。其中柱面滑移和基面滑移的 CRSS 比值约为 3.2, 显著低于纯 Mg。这个研究揭示了 Y 元素提高纯镁塑性的本征机理是降低非基面滑移与基面滑移的 CRSS 比值。

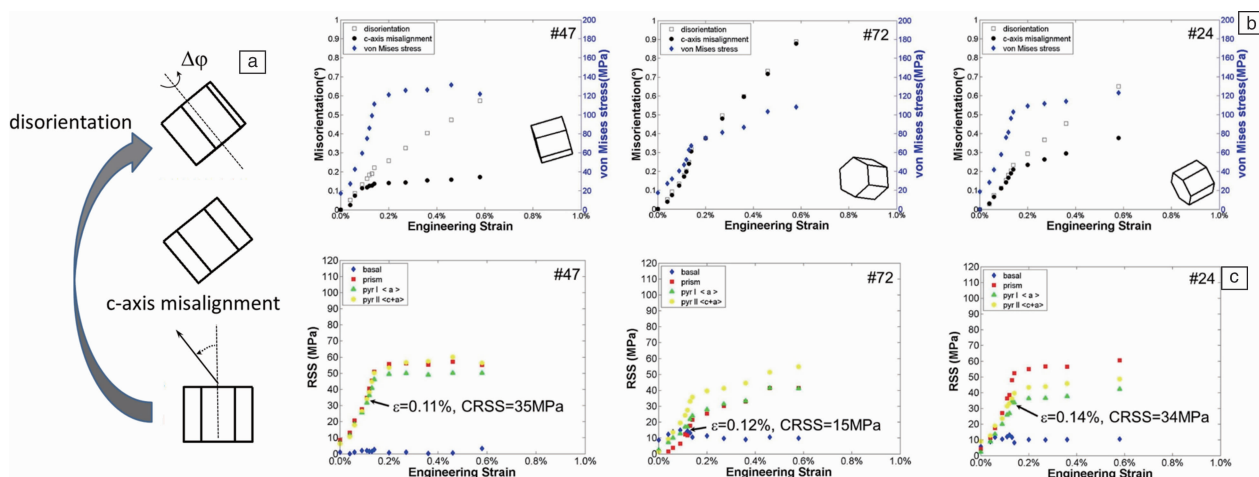


图 7 通过原位 3DXRD 测量 Mg-3% Y (质量分数) 合金中不同滑移系的 CRSS^[31]: (a) 晶体取向旋转中的取向差 (disorientation) 和 c 轴转角 (c -axis misalignment) 的定义; (b) 3 个晶粒中的晶体取向旋转及 Mises 应力的演化, 3 个晶粒分别发生了柱面滑移、基面滑移及锥面 $\langle a \rangle$ 滑移; (c) 3 个晶粒中各滑移系的切应力的演化

Fig. 7 Measuring the critical resolved shear stress (CRSS) of a Mg-3wt% Y alloy using *in-situ* 3DXRD^[31]: (a) Definition of disorientation and c -axis misalignment; (b) Evolution of the disorientation, c -axis misalignment, and von Mises stress values in three grains that show the slip activity of prismatic slip, basal slip and pyramidal slip, respectively; (c) Evolution of resolved shear stress values on different slip systems in the three grains

3.4 材料失效过程研究

理解工程材料的失效过程对于预计其服役寿命以及改进设计具有重要意义。传统的研究手段, 如断口分析、电镜表征等, 无法清晰认识材料内部的裂纹产生过程, 尤其对裂纹产生的晶体学与局部力学条件。3DXRD 结合 X 射线断层扫描技术 (XCT) 是研究材料失效过程的一种新手段, 尤其适合各种原位实验条件。

氢脆是许多高强度工程材料失效的一种重要机制, 在石化、核电、储氢等工业领域尤其普遍。经过长期研究, 人们认识到氢脆是由氢原子与材料中的各种缺陷, 如位错、点缺陷、晶界的交互作用所导致, 是一个复杂的物理过程。目前仍不清楚哪些晶界容易成为氢脆的发源地。Hanson 等^[32] 将一根直径为 1 mm 的镍基 725 合金在充入氢气后拉伸至断裂, 通过 XCT 技术在断口附近找到了位于材料内部的若干条微裂纹。之后, 他们对相关区域进行了近场 3DXRD 表征 (取向分辨率: 0.1° , 空间分辨率: $1.5 \mu\text{m}$), 获得了这些微裂纹附近的晶粒形貌和晶体取向信息。着重分析了哪些晶界会更有效地阻挡裂纹扩展, 即图 8a 中所示的裂纹阻挡晶界 (crack-resistant grain boundary plane)。对 10 处裂纹阻挡晶界进行晶体学分析 (图 8b), 发现当晶界两侧晶粒中至少有一侧对应的是低指数晶面时, 晶界对裂纹扩展的阻挡能力会较高。

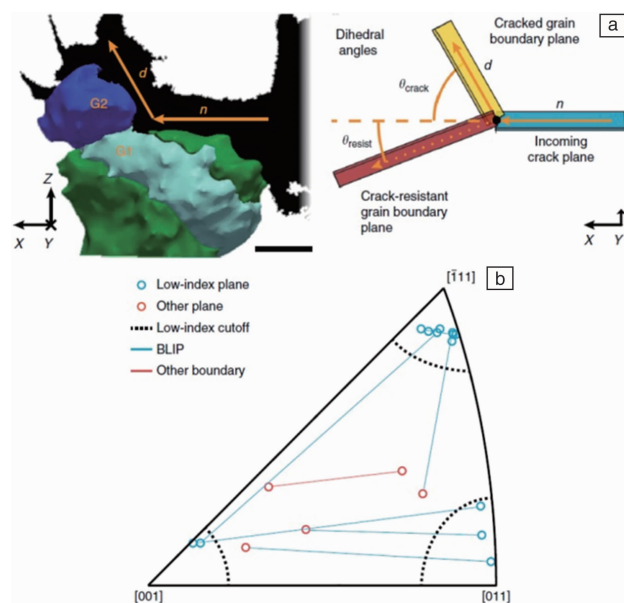


图 8 氢脆裂纹扩展的 3DXRD 研究^[32]: (a) 裂纹转向过程示意图, (b) 10 处裂纹阻挡晶界 (crack-resistant grain boundary plane) 的晶体学分析

Fig. 8 Study of hydrogen embrittlement by 3DXRD^[32]: (a) schematic of crack deflection event (CDE), (b) orientation of plane normal directions for each pair of grains meeting at the un-cracked grain boundary in a CDE

疲劳是工程材料失效的另一种主要机制。疲劳寿命的短裂纹 (small fatigue crack) 扩展阶段特别受关注, 因为短裂纹扩展阶段占到部件疲劳寿命的 90% 以上。目前, 对于疲劳短裂纹扩展的晶体学和局部力学条件的认识不充分。Naragani 等^[33]研究了含有氧化铝颗粒的镍基超合金 RR1000 的疲劳短裂纹的扩展。实验所采用的 RR1000 合金是由粉末冶金法制备的, 晶粒尺寸约为 $23 \sim 32 \mu\text{m}$, 具有随机织构, 样品横截面为 $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ 。实验采用循环应力载荷, 应力变化范围为 $0 \sim 600 \text{ MPa}$ (60% 的屈服应力)。在 10 000 次循环后, 通过 XCT 在氧化铝颗粒与基体的界面处观察到了一条裂纹。继续到 20 000 次循环后, 他们用近场 3DXRD (取向分辨率: 0.1° , 空间分辨率: $1.5 \mu\text{m}$) 首先表征了裂纹附近的 50 个晶粒的形貌和晶体取向。接下来, 对经 20 000, 21 000, 23 000,

26 000, 30 000, 36 000, 38 000, 41 000, 45 000, 52 000 次循环载荷后的样品, 分别用远场 3DXRD 表征了这些晶粒的应力状态。图 9a 展示了不同次数循环后样品的裂纹形貌变化以及裂纹附近晶粒的应力变化, 包括 Mises 应力、等静应力以及应力三轴比。可以看到, 在裂纹的上、中、下 3 个区域, 晶粒的应力状态有较大差异, 此外, 循环次数从 30 000 到 41 000 时, 晶粒的 Mises 应力下降, 而等静应力与应力三轴比均上升。他们还研究了其中 457#晶粒的裂纹生长方向及长度与 $\{111\} \langle 110 \rangle$ 滑移系上的最大切应力的关系, 如图 9b 所示。他们发现, 疲劳短裂纹往往沿着具有最大切应力的滑移系的滑移面上生长, 且裂纹生长速率与该滑移系上的切应力数值有直接关系。

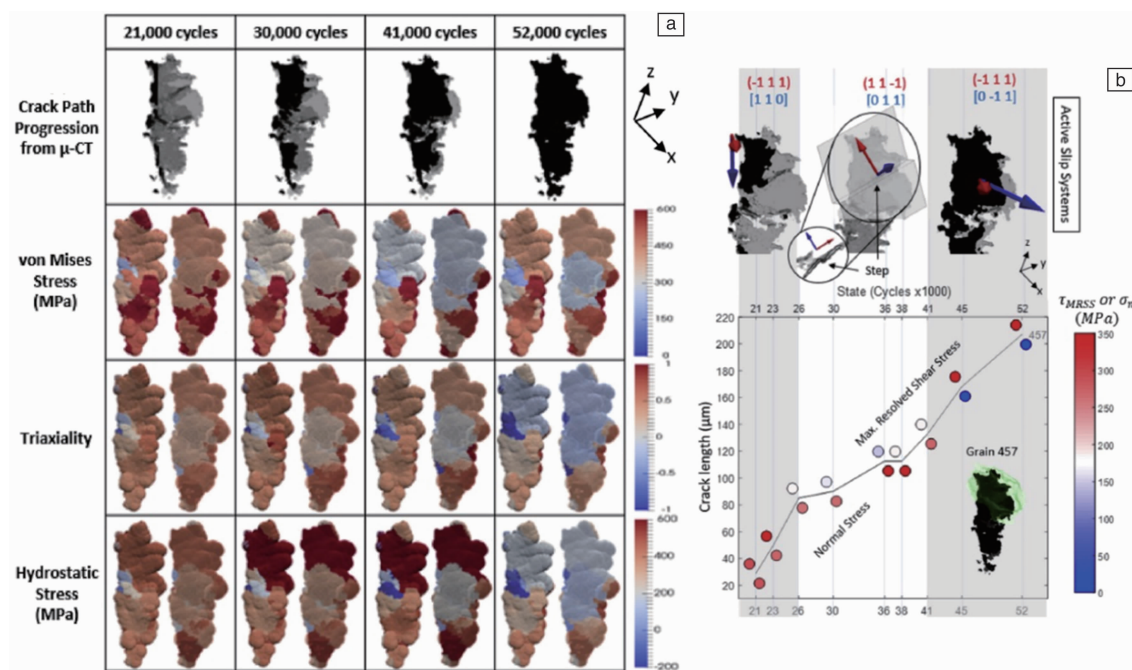


图9 原位 3DXRD 研究镍基合金中的疲劳裂纹扩展^[33]: (a) 不同循环次数后的裂纹形貌变化以及裂纹附近晶粒的应力变化, 包括 Mises 应力、等静应力以及应力三轴比; (b) 457#晶粒的 $\{111\} \langle 110 \rangle$ 滑移系上的最大切应力与裂纹生长方向及长度的关系

Fig. 9 Study of the fatigue crack growth in Ni-based alloy by *in-situ* 3DXRD measurement^[33]: (a) Crack propagation and the stress state change in the surrounding grains, including the von Mises stress, hydrostatic stress, and stress triaxiality; (b) The relation between the maximum resolved shear stress on the $\{111\} \langle 110 \rangle$ slip systems in grain 457 and the crack propagation direction and length

3.5 晶体塑性有限元模型的验证

晶体塑性有限元 (crystal plasticity finite element, CPFE) 模型是模拟多晶材料塑性变形行为的一种数学抽象, 它充分考虑了每个晶粒中由位错滑移或孪晶导致的局部塑性应变以及晶粒与晶粒之间的交互作用^[34]。在以往研究中, CPFE 模型的验证一般是将模拟结果与材料的实验拉伸曲线以及织构演变进行比对。然而, 在晶粒尺度上的比较相对较少。此外, CPFE 模型一般采用的是根

据材料宏观织构生成的虚拟晶粒结构^[35], 或者是根据材料表面晶粒形貌与取向 (一般由 EBSD 测定) 生成的柱状晶结构^[36], 无法真实反映材料内部的结构信息。

3DXRD 为 CPFE 模型的验证提供了前所未有的丰富的实验信息^[37]。一方面, 3DXRD 对材料初始状态的表征结果 (晶粒位置、形貌、取向) 可以作为 CPFE 模型的输入晶粒结构。另一方面, 通过原位 3DXRD 获得的晶粒取向与应力演变信息可以用来验证模型在模拟晶粒尺度

变形上的有效性。

Kapoor 等^[38]利用 3DXRD 测得的 Ti-7Al 晶粒形貌与取向信息建立 CPFE 模型(图 10a),该模型能较好地重复样品的应力-应变曲线(图 10b)。对于 0.5% 应变下不同晶粒中的 σ_{yy} 值,CPFE 模型的模拟结果与实验值有一定程度的不同(图 10c);当用晶粒的初始残余应力对模型修正后,模拟结果的准确度有所提升(图 10d)。

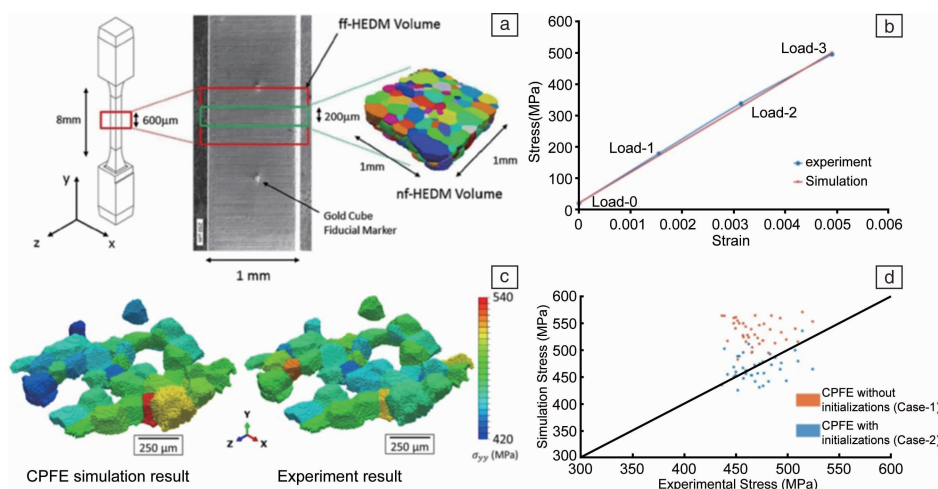


图 10 原位 3DXRD 测量和晶体塑性有限元(crystal plasticity finite element, CPFE)模拟结合对 Ti-7Al 的研究^[38]: (a)将 3DXRD 测得的 Ti-7Al 合金的晶粒形貌与取向信息代入 CPFE 模型; (b)样品的实验及模拟应力-应变曲线; (c)在 0.5% 应变下 CPFE 模拟的和 3DXRD 测得的晶粒 σ_{yy} 应力对比; (d)在考虑了晶粒初始应力之后,晶粒中 σ_{yy} 应力的 CPFE 模拟值与实验值更为接近

Fig. 10 The combination of *in-situ* 3DXRD measurement and CPFE simulation for Ti-7Al^[38]: (a) The grain morphology and crystal orientation information from 3DXRD are used for CPFE model input; (b) Simulated and experimental stress-strain curves; (c) Comparison of σ_{yy} stress component between CPFE simulation and 3DXRD measurement at 0.5% strain; (d) The CPFE model becomes more accurate in capturing the stress state in the grains after taking the initial residual stress into consideration

4 结 语

本文通过多个应用案例展示了 3DXRD 技术在工程材料研究中的巨大潜力,这主要得益于该技术对于材料内部晶粒晶体取向、形貌、位置以及局部应力的无损快速表征。

当前,对 3DXRD 技术还需在以下几个方面加强研究:① 技术普及性:尽管目前大多数同步辐射光源都具备中能或高能 X 射线衍射线站,但能开展 3DXRD 实验的寥寥无几。这是由于 3DXRD 对 X 射线光束均匀性有很高的要求,需要特殊的聚光镜系统。目前,我国尚不完全具备相关硬件的自主开发能力。② 数据通用性:目前,3DXRD 的数据格式和分析方法主要由国际上各相关线站及部分用户开发,缺乏统一的标准,数据与分析软件的兼容性不足,例如线站 A 采集的数据往往无法用线站 B 开发的分析软件来分析。解决这个问题需要全球范围内的协作,开发统一的数据格式及分析软件。③ 专业人员培养:3DXRD 不同于普通的 XRD 实验,其数据采

集与分析需要专业的线站科学家和有经验的用户共同完成,我国将来拟在一些高能同步辐射装置上配置 3DXRD 技术,不但要加强相关硬件的自主研发,也需尽快培养专门的线站科学家,建立长效的人才任用机制,这对于相关学科和技术的高质量发展至关重要。

上述研究表明,现有的 CPFE 模型尽管在模拟材料宏观拉伸行为方面取得了很好的准确率,但在准确描述每个晶粒的变形行为上仍然存在提升空间。

集与分析需要专业的线站科学家和有经验的用户共同完成,我国将来拟在一些高能同步辐射装置上配置 3DXRD 技术,不但要加强相关硬件的自主研发,也需尽快培养专门的线站科学家,建立长效的人才任用机制,这对于相关学科和技术的高质量发展至关重要。

参考文献 References

- [1] WANG L Y, LI M M, ALMER J, *et al.* *Frontiers of Materials Science* [J], 2013, 7: 156-169.
- [2] MILLER M P, PAGAN D C, BEAUDOIN A J, *et al.* *Metallurgical and Materials Transactions A* [J], 2020, 51: 4360-4376.
- [3] WILLMOTT P. *An Introduction to Synchrotron Radiation: Techniques and Applications* [M]. New York: Wiley, 2011.
- [4] 姜晓明, 王九庆, 秦庆, 等. *中国科学: 物理学 力学 天文学* [J], 2014, 44(10): 1075-1094.
JIANG X M, WANG J Q, QIN Q, *et al.* *Scientia Sinica (Physica, Mechanica & Astronomica)* [J], 2014, 44(10): 1075-1094.
- [5] 王沿东, 张哲维, 李时磊, 等. *中国材料进展* [J], 2017, 36(3): 168-174.

- WANG Y D, ZHANG Z W, LI S L, *et al.* Materials China[J], 2017, 36(3): 168–174.
- [6] POULSEN H F. Three-Dimensional X-ray Diffraction Microscopy[M]. Berlin: Springer; 2004.
- [7] POULSEN H F. Journal of Applied Crystallography[J], 2012, 45: 1084–1097.
- [8] MARGULIES L, LORENTZEN T, POULSEN H F, *et al.* Acta Materialia[J], 2002, 50: 1771–1779.
- [9] ROLLETT A D, ROHRER G S, SUTER R M. MRS Bulletin[J], 2015, 40: 951–958.
- [10] WANG L Y, LIND J, PHUKAN H, *et al.* Scripta Materialia[J], 2014, 92: 35–38.
- [11] JIA N, CONG Z H, SUN X, *et al.* Acta Materialia[J], 2009, 57: 3965–3977.
- [12] WANG L Y, LI M M, ALMER J, *et al.* Acta Materialia[J], 2014, 62: 239–249.
- [13] SOFINOWSKI K, ŠMÍD M, VAN PETEGEM S, *et al.* Acta Materialia[J], 2019, 181: 87–98.
- [14] WANG J, WANG L Y, ZHU G, *et al.* Metallurgical and Materials Transactions A[J], 2018, 49: 5382–5392.
- [15] SCHMIDT S. Journal of Applied Crystallography[J], 2014, 47: 276–284.
- [16] SHARMA H, HUIZENGA R M, OFFERMAN S E. Journal of Applied Crystallography[J], 2012, 45: 705–718.
- [17] CHATTERJEE K, KO J Y P, WEISS J T, *et al.* Journal of the Mechanics and Physics of Solids[J], 2017, 109: 95–116.
- [18] LI S F, LIND J, HEFFERAN C M, *et al.* Journal of Applied Crystallography[J], 2012, 45: 1098–1108.
- [19] LIND J, LI S F, POKHAREL R, *et al.* Acta Materialia[J], 2014, 76: 213–220.
- [20] POULSEN H F, MARGULIES L, SCHMIDT S, *et al.* Acta Materialia[J], 2003, 51: 3821–3830.
- [21] WINTHER G, MARGULIES L, SCHMIDT S, *et al.* Acta Materialia[J], 2004, 52: 2863–2872.
- [22] WANG L Y, ZHENG Z, PHUKAN H, *et al.* Acta Materialia[J], 2017, 132: 598–610.
- [23] SCHUREN J C, SHADE P A, BERNIER J V, *et al.* Current Opinion in Solid State and Materials Science[J], 2015, 19: 235–244.
- [24] HAYASHI Y, SETOYAMA D, HIROSE Y, *et al.* Science[J], 2019, 366: 1492–1496.
- [25] GONG J, BENJAMIN BRITTON T, CUDDIHY M A, *et al.* Acta Materialia[J], 2015, 96: 249–257.
- [26] LIU Y, LI N, ARUL K M, *et al.* Acta Materialia[J], 2017, 135: 411–421.
- [27] BIELER T R, WANG L Y, BEAUDOIN A J, *et al.* Metallurgical and Materials Transactions A[J], 2014, 45A: 109–122.
- [28] PAGAN D C, SHADE P A, BARTON N R, *et al.* Acta Materialia[J], 2017, 128: 406–417.
- [29] PAGAN D C, BERNIER J V, DALE D, *et al.* Scripta Materialia[J], 2018, 142: 96–100.
- [30] HUANG Z, WANG L Y, ZHOU B, *et al.* Scripta Materialia[J], 2018, 143: 44–48.
- [31] WANG L Y, HUANG Z, WANG H, *et al.* Acta Materialia[J], 2018, 155: 138–152.
- [32] HANSON J P, BAGRI A, LIND J, *et al.* Nature Communication[J], 2018, 9: 3386.
- [33] NARAGANI D P, SHADE P A, KENESEI P, *et al.* Acta Materialia[J], 2019, 179: 342–359.
- [34] ROTERS F, EISENLOHR P, HANTCHERLI L, *et al.* Acta Materialia[J], 2010, 58: 1152–1211.
- [35] SHÉMERY S, NAÏT-ALI A, GUÉGUEN M, *et al.* Acta Materialia[J], 2019, 181: 36–48.
- [36] LI W, WANG L Y, ZHOU B, *et al.* Journal of Materials Science and Technology[J], 2019, 35: 2200–2206.
- [37] SHADE P A, MUSINSKI W D, OBSTALECKI M, *et al.* Current Opinion in Solid State and Materials Science [J], 2019, 23: 100763.
- [38] KAPOOR K, SANGID M D. Materials Science and Engineering: A[J], 2018, 729: 53–63.
- [39] ABDOLVAND H, WRIGHT J, WILKINSON A J. Nature Communication[J], 2018, 9: 171.
- [40] ALAWADI A, ABDOLVAND H. Journal of the Mechanics and Physics of Solids[J], 2020, 135: 103799.

(编辑 惠 琼)