

ВАРЮХИН В.Н., ПАШИНСКАЯ Е.Г., МЕТЛОВ Л.С., МОРОЗОВ А.Ф.,
БЕЙГЕЛЬЗИМЕР Я.Е., СЫНКОВ С.Г. (ДОНФТИ НАНУ, Г. ДОНЕЦК)

ПРАКТИКА ПРИМЕНЕНИЯ ГИДРОМЕХАНИЧЕСКОГО ПРЕССОВАНИЯ С ПРОТИВОДАВЛЕНИЕМ И КРУЧЕНИЕМ ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ СУБМИКРОКРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ МЕДИ

Методами рентгеновского дифрактометрического анализа, оптической и электронной микроскопии, измерения микротвердости и плотности исследованы процессы формирования ультрамелкодисперсной структуры в меди, полученной новым методом интенсивной пластической деформации — гидромеханическим прессованием с противодавлением и кручением. С помощью компьютерного эксперимента проведено моделирование ансамбля попарно взаимодействующих частиц и изучены особенности и закономерности формирования наноразмерных структур в условиях сдвигового деформирования.

Среди способов достижения субмикроструктурного состояния особое место занимают методы интенсивных пластических деформаций (ИПД). В основном используются два метода: кручение в наковальнях Бриджмена и равноугловое прессование цилиндрических и призматических заготовок [1,2]. В ДонФТИ НАНУ предложена схема, сочетающая гидромеханическое прессование с противодавлением и кручением [3]. Цилиндрическую заготовку устанавливали в матрице с винтовым каналом, заполненным рабочей жидкостью (масло индустриальное И20). Это обеспечивало определенный (500-600 МПа) уровень гидростатического давления. Причем, на первом этапе происходит формоизменение цилиндрического прутка по схеме «круг-квадрат» ($\varnothing 24 \times 17$ мм), а во второй части очага — кручение заготовки в винтовой плоскости с переменным углом наклона винтовой линии к оси матрицы в диапазоне $0^\circ - 60^\circ$ без изменения сечения. Метод многоциклового гидромеханического прессования с противодавлением и кручением за один проход позволяет достичь деформации $\epsilon = 1.65$. С учетом формообразования степень деформации (параметр Одквиста) в первом переходе составляет $\epsilon = (0.7 + 1.65) = 2.35$, а в каждом последующем $\epsilon = 1.65$. По этой схеме выполнено 4 цикла прессования и накоплена деформация $\epsilon = 7.3$. Методика расчета степени деформации приведена авторами в публикации [3].

Материал и методика эксперимента

Одним из наиболее исследованных материалов после ИПД является медь, что делает ее привлекательной для апробирования новых методов в качестве модельного материала. В данной работе авторы ставили цель проследить эволюцию структуры и свойств меди М1 при многоциклового гидромеханическом прессовании с противодавлением и кручением. Исходные образцы предварительно деформировались гидроэкструзией (g/ϵ), затем отжигались при температуре 500°C в течение 2-х часов. После гидромеханического прессования и кручения образцы имели размеры $17 \times 17 \times 120$ мм. Для сравнения исследовали образцы с разными степенями деформации ($\epsilon = 0; 2.35; 4.0; 5.65; 7.3$).

Микроструктуру полученных образцов исследовали в сечениях, перпендикулярных и параллельных оси деформации, при увеличениях $60 \times$ и $2000 \times$ (в иммерсионном режиме) на микроскопе Neophot-32. Фотографирование проводили с применением цифровой камеры. Количественный анализ параметров структуры выполнялся с помощью компьютерной программы Image Tool. Исследование субмикроструктуры прово-

дилось методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) на фольгах. Для оценки упрочнения измерялась микротвердость образцов на ПМТ-3 с нагрузкой 25 г. Плотность образцов оценивалась после каждого этапа деформации методом гидростатического взвешивания. Механические испытания проводились на динамометре Instron при комнатной температуре со скоростью перемещения траверсы 0,5 мм/мин на плоских гантелеобразных образцах с рабочими размерами 0,7×2,5×5мм.

Известно, что рентгенограммы наноструктурных материалов характеризуются целым рядом особенностей [4,5]. Рентгеноструктурный анализ проводился по методу Брегга-Брентано в интервале углов $2\theta=40^{\circ}-140^{\circ}$ при использовании фильтрованного K_{α} -медного излучения на автоматизированной установке ДРОН-3. Из экспериментальных зависимостей с помощью ЭВМ вычитали $K_{\alpha 2}$ составляющую рентгеновского излучения, шаг съемки составил 0.01° . Время накопления равно 5 мин.

Наряду с экспериментальными исследованиями для уточнения динамики эволюции субмикроструктуры проводился компьютерный эксперимент. Система 18×18 классических частиц, взаимодействующих посредством парного центрально симметричного потенциала Леннарда-Джонса, подвергалась различного рода многоцикловым сдвиговым деформациям. Структурные перестройки, наблюдаемые на моделях двумерных кристаллах в компьютерном эксперименте, с учетом соотношений подобия сопоставлялись со структурами, получаемых в реальном эксперименте.

Полученные результаты и их обсуждение

Микротвердость меди в исходном отожженном состоянии составляла 550 МПа. После предварительной гидроэкструзии и отжига (2 часа, 500°C) микротвердость составила 690 МПа на поверхности и 870 МПа в центре образца. Такая неоднородность свойств может быть связана с особенностями протекания процесса статической рекристаллизации после гидроэкструзии. Хорошо известно, что на поверхности образца деформация максимальна и, следовательно, скорость развития рекристаллизации на поверхности выше. Поэтому мы наблюдаем здесь большие размеры зерна, чем в центре, и меньшую микротвердость. В случае применения гидромеханического прессования с противодавлением и кручением наблюдается значительное увеличение твердости и микротвердости на первом этапе деформации ($\epsilon=2.35$). При дальнейшей деформации фиксируется небольшой прирост микротвердости, кривые имеют вид кривых насыщения. Для меди при достижении $\epsilon=7.3$ микротвердость составляет 950 МПа; измерение микротвердости по зонам в зависимости от степени деформации представлено на рис.1. Резкое падение микротвердости при деформации $\epsilon=6.5$ в центре может быть связано с рекристаллизацией зерен или с формированием микропор (рис.2). Данный факт требует подтверждения дургими методами исследований, что и будет сделано ниже.

На всех образцах наблюдается структура, качественно не отличающаяся на периферии и в центре. Для отожженной меди характерна равноосная зеренная структура с размером зерна 100–200 мкм. Кривые частотного распределения зерен по размерам подчиняются закону логарифмически нормального распределения, максимальную частоту появления имеют зерна с размером 150 мкм. После деформации $\epsilon=2.35$ наблюдается измельчение зерен до 10–20 мкм и появление вихревой структуры, занимающей 90% площади образца и характеризующейся хаотическим характером полос деформации в теле зерна. Формирование аналогичной структуры описано в работе [6], где данное явление наблюдалось при осесимметричной холодной пластической деформации ОЦК металлов с предварительно сформированной текстурой.

Для кривых частотного распределения зерен по размерам характерно бимодальное распределение с модами 15 мкм и 0,2 мкм. Вероятнее всего, это рекристаллизованное статически и деформированное на следующем этапе зерно. Наблюдается большое

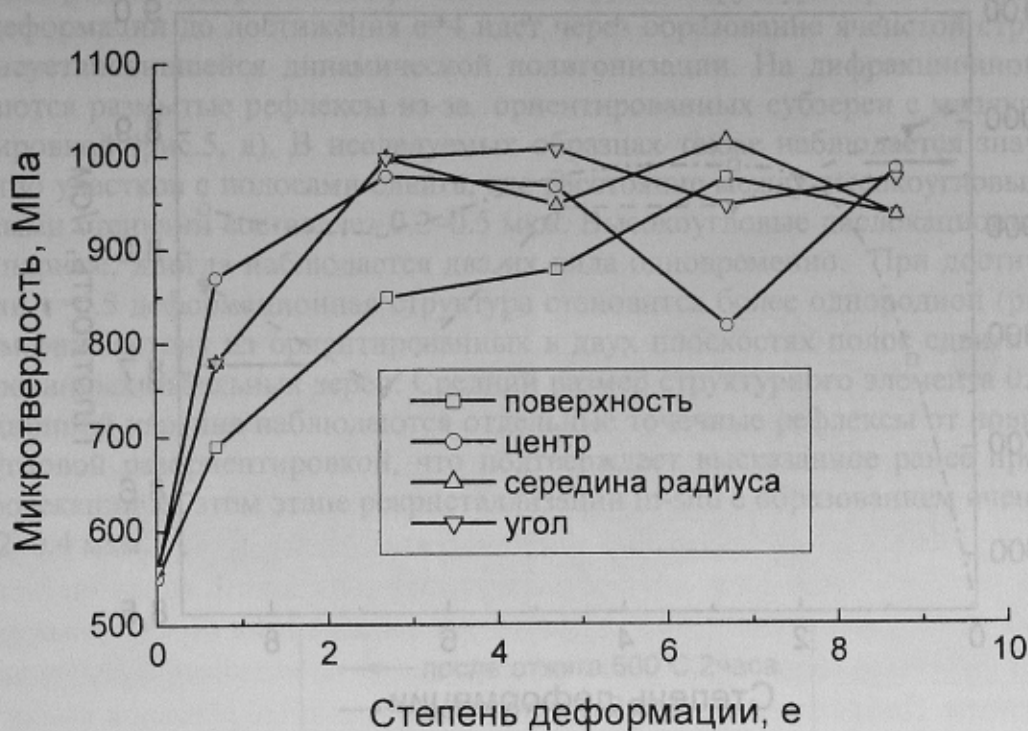


Рис. 1. Изменения микротвердости от степени деформации (по сечению образца)

количество двойников. На этом этапе в зерне 10–20 мкм формируется фрагментированная структура, содержащая элементы равноосных мелких субзерен, имеющих не замкнутые границы [7] и средним размером 0,2 мкм. При увеличении деформации до $e=4$ структура еще более измельчается, зерно имеет размеры 5–10 мкм. Двойники не наблюдаются, фрагментированная структура трансформируется в мелкие равноосные субзерна, которые имеют хорошо сформированные замкнутые границы.

Известно, что при гидроксуживании максимальная деформация локализуется на поверхности образца и, следовательно, процессы отдыха и возврата здесь должны протекать более интенсивно. И действительно, в угловой зоне ($e=4$) мы наблюдаем мелкое субзерно со средним размером 0.2 мкм. В то же время значительное изменение микротвердости и твердости в этой зоне не фиксировалось. Измерения показали некоторое уменьшение плотности при $e=2.35$ и 4, а также значительное падение плотности и микротвердости при достижении степени деформации $e=6.5$. Мы предполагаем, что при данном режиме деформирования могут формироваться очень мелкие поры, которые не фиксируются при увеличении порядка $\times 6000$. Возможно это поры, сформированные на тройных стыках зерен. Как ранее было сказано, уменьшение микротвердости и твердости при достижении $e=6.5$ может быть объяснено, с одной стороны, порообразованием (причем при деформации $e=6.5$ оно проявляется в максимальной степени); с другой стороны, рекристаллизации *in-situ* [8], тем более, что калориметрические оценки показывают возможность небольших ($70 \div 100^\circ\text{C}$) локальных разогревов в теле образца. Предыдущими исследованиями авторов показано, что температура статической рекристаллизации для меди после аналогичной деформации составляет $150 \div 170^\circ\text{C}$. В пользу этого предположения также могут говорить данные металлографического анализа, показывающие некоторое увеличение среднего размера фрагментов (предположительно не субзерен, а зерен) до 0.3 мкм и появлению одиночных достаточно крупных зерен 20–30 мкм. Процессы рекристаллизации, связанные с диффузионным переносом вещества, могут также приводить к залечиванию очень мелких пор. Статистическая обработка измерений микротвердости показала более высокие значения стандартного отклонения

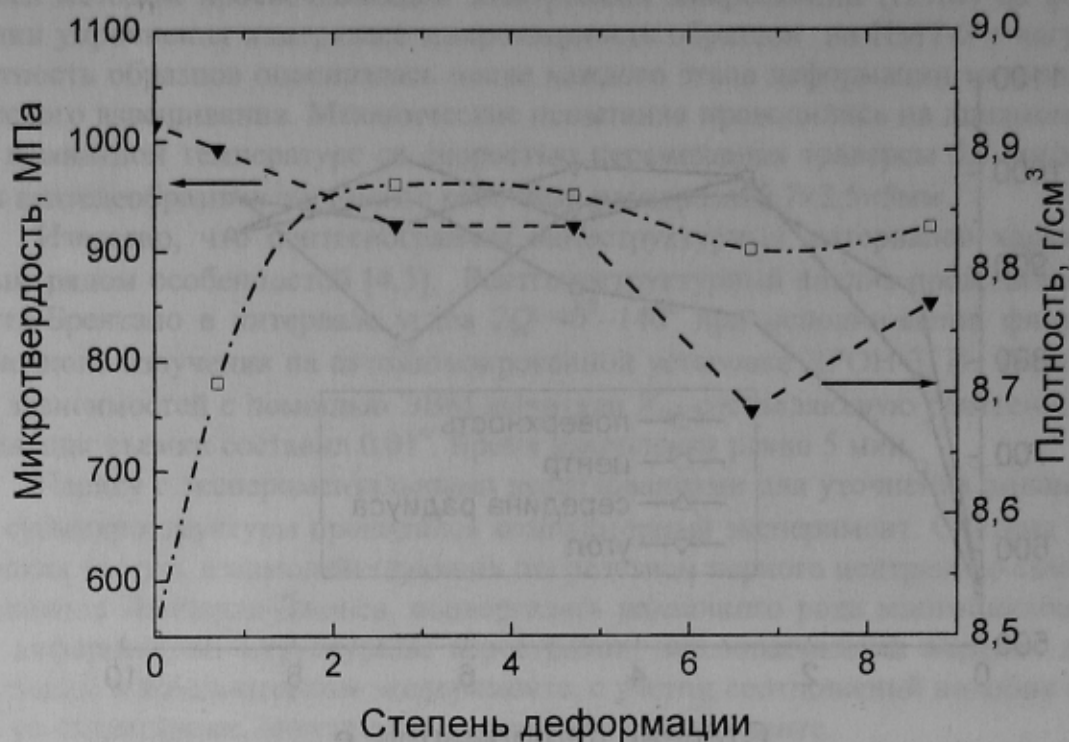


Рис.2. Изменение плотности и средней микротвердости меди в зависимости от степени деформации

(на 10–20%) и коэффициента вариации, что также свидетельствует о разнотерности меди после частичной рекристаллизации. Интересно, что особенности структуры, сформированной при достижении деформации $\epsilon=6.5$ отражаются также на поведении материала при нагреве. Отжиг, выполненный при температурах 100, 150, 200, 250⁰С длительностью до 8 часов, показал, что медь, деформированная до $\epsilon=6,5\%$, обладает наибольшей термической стабильностью (рис.3, 4). При достижении $\epsilon=7.3$ структура изменяется мало, происходит увеличение плотности материала, рост микротвердости.

Высказанное предположение о рекристаллизации in-situ требует подтверждения другими методами контроля, например методами рентгеноструктурного анализа и электронной микроскопии.

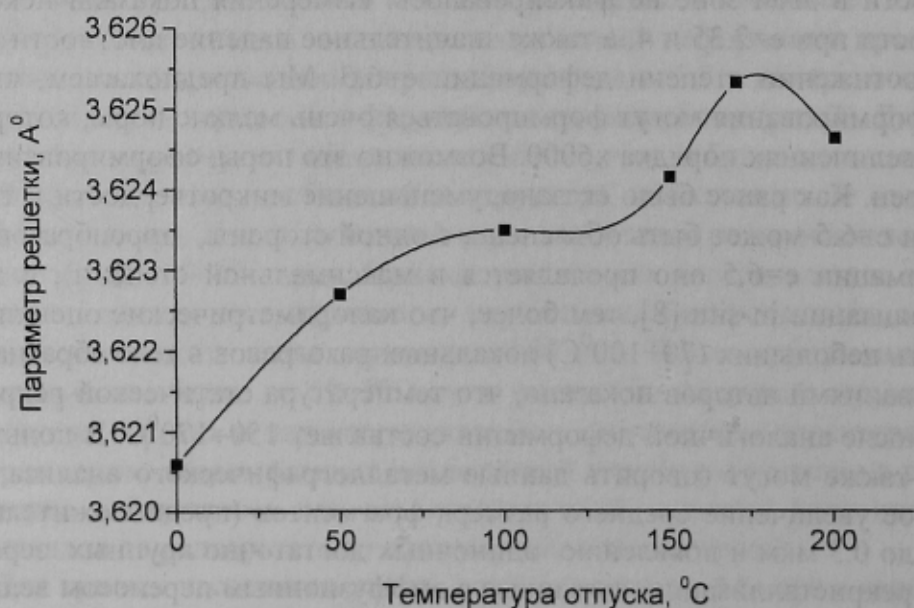


Рис.3. Изменение параметра решетки меди ($\epsilon=2.35$) в зависимости от температуры отжига

Электронная микроскопия фольг показала, что структурообразование на ранних этапах деформации до достижения $\epsilon=4$ идет через образование ячеистой структуры со стадии неустановившейся динамической полигонизации. На дифракционной картине наблюдаются размытые рефлексии из-за ориентированных субзерен с малоугловой разориентировкой (рис.5, а). В исследуемых образцах также наблюдается значительное количество участков с полосами сдвига, где расстояние между высокоугловыми дислокационными стенками составляет 0.2–0.5 мкм. Высокоугловые дислокационные стенки обычно парные, иногда наблюдается два их вида одновременно. При достижении деформации $\epsilon=6.5$ деформационная структура становится более однородной (рис.5, б). В основном она состоит из ориентированных в двух плоскостях полос сдвига и хорошо сформированных отдельных зерен. Средний размер структурного элемента 0.3 мкм. На дифракционной картине наблюдаются отдельные точечные рефлексии от новых зерен с большеугловой разориентировкой, что подтверждает высказанное ранее предположение о протекании на этом этапе рекристаллизации in-situ с образованием очень мелкого зерна 0.2–0.4 мкм.

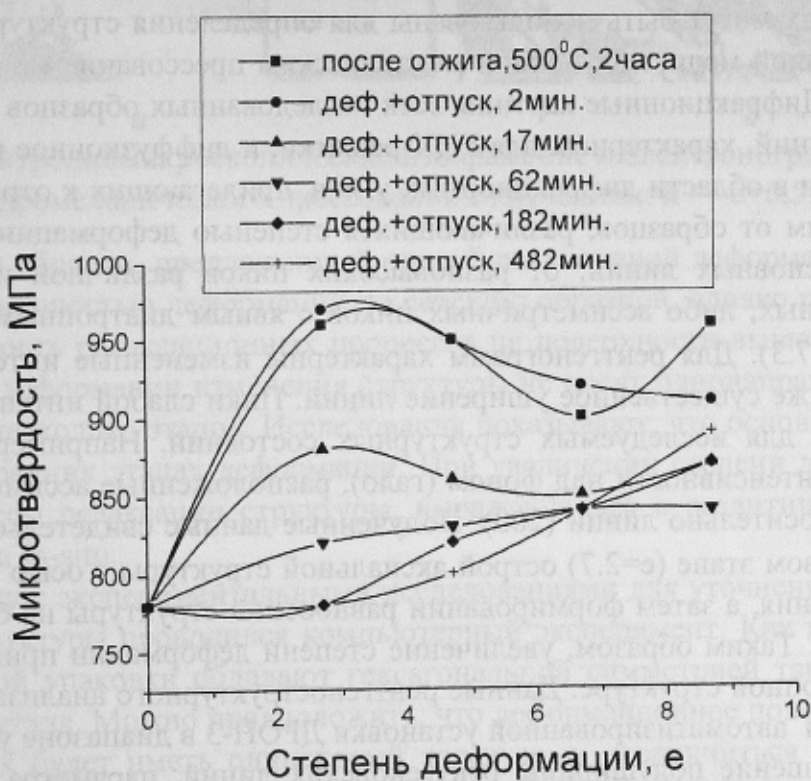


Рис.4. Изменение микротвердости от времени отжига (150°C) и степени деформации: ■ — деформация; ● — деформация+отпуск, 2 мин; ▲ — деформация+отпуск, 17 мин; ▼ — деформация+отпуск, 62 мин; ◆ — деформация+отпуск, 182 мин; + — деформация+отпуск, 482 мин

Таким образом, можно считать надежно установленным тот факт, что в результате гидромеханического прессования с противодавлением и кручением формируется структура в общем случае представляющая собой суперпозицию деформированных зерен и вновь сформированных равноосных зерен со средним размером 0,3 мкм, характеризующихся большеугловой разориентировкой. Особенности сформированной микроструктуры проявляются на уровне механических свойств: для меди после ВГЭ $\epsilon=6.5$ характерны одновременно высокие значения прочностных ($\sigma_B=427$ МПа; $\sigma_T=394$ МПа) и пластических характеристик (относительное удлинение $\delta=17\%$) (табл.1).

Табл. 1. Механические свойства меди М 1 с деформацией $\epsilon=6,5$ после гидромеханического гидропрессования с противодавлением и кручением

Сечение образца	Предел прочности, МПа	Предел текучести, МПа	Относительное удлинение
Поперек ВГЭ	426	393	18
Вдоль ВГЭ	428	394	16
Проволока холоднотянутая	430	380	1,2

Одновременное влияние малого размера зерен и больших неоднородных искажений на рассеяние рентгеновских лучей в ИПД субмикроструктурных материалах значительно усложняет интерпретацию рентгенограмм. Поэтому мы проводили съемку в широком диапазоне углов, т.к. заранее было трудно определить какие именно линии на рентгенограммах могут быть использованы для определения структурных параметров деформированной меди, полученной механическим прессованием с противодавлением кручением. Дифракционные картины всех исследованных образцов имели вид ярких дебаевских линий, характерных для ГЦК-решетки, и диффузионное рассеяние слабой интенсивности в области дифракционных углов, прилегающих к отражению (200). Для дифрактограмм от образцов, различающихся степенью деформации, имеет место различие форм основных линий: от разновысоких пиков различной интенсивности ($\epsilon=0$) до раздвоенных, либо ассиметричных пиков с явным диатропным максимумом текстуры ($\epsilon=2.35\div 7.3$). Для рентгенограмм характерны измененные интегральные интенсивности, а также существенное уширение линий. Пики слабой интенсивности также не однотипны для исследуемых структурных состояний. Например, появляются флуктуирующие интенсивности над фоном (гало), расположенные ассиметрично, либо симметрично относительно линии (200). Полученные данные свидетельствуют о формировании на первом этапе ($\epsilon=2.7$) острой аксиальной структуры с осью $\langle 111 \rangle$, параллельной оси кручения, а затем формировании равноосной структуры на более поздних стадиях при $\epsilon=7.3$. Таким образом, увеличение степени деформации приводит к более однородной изотропной структуре. Данные рентгеноструктурного анализа, полученные при использовании автоматизированной установки ДРОН-3 в диапазоне углов $40^{\circ}-140^{\circ}$, показали уменьшение полуширины рентгеновских линий, параметра решетки при $\epsilon=6.5$ в сравнении с $\epsilon=4$. Показано, что существуют определенные этапы структурообразования и процесс не развивается линейно, что находит отражение в изменении: интенсивности линий, микроискажений, параметра решетки. Авторами [9–11] рассмотрен вопрос о кинетике структурообразования при ИПД. Интересным является факт, отмеченный в [9], что при ИПД кручении меди также наблюдается немонотонный характер эволюции (варьируется размер микроструктурных кристаллитов, упругие напряжения, плотность дислокаций, микротвердость). Автор [11] показал, что для наноструктурной меди, полученной кручением, под давлением, усредненные рентгеновские значения параметров кристаллической решетки 0.36135 ± 0.00003 нм, что на 0.03% меньше значения для крупнокристаллической меди (0.36143 ± 0.00002), табличное значение 0.36150 нм. Для РКУ прессования параметр решетки 0.36133 ± 0.00005 нм меньше табличного на 0.04%. Для меди, полученной г/э с кручением по сравнению с исходным состоянием это уменьшение составляет 0.036% ($0.36193\rightarrow 0.3618$ нм). Небольшое увеличение парамет-

ра решетки исследуемой меди в исходном отожженном состоянии относительно табличного значения, объясняется наличием в ней примесей. В целом уменьшение параметра решетки при деформации гидроэкструзией с кручением больше, чем при кручении под давлением в наковальнях, но меньше чем изменения параметра решетки, вызванные РКУ-прессованием.

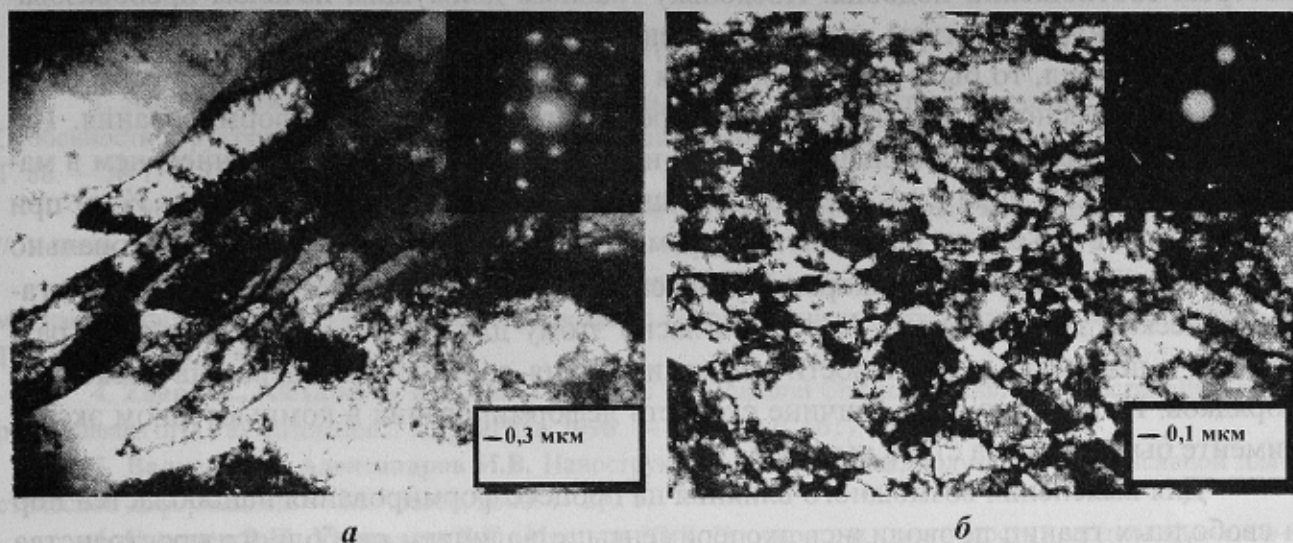


Рис.5. Электронномикроскопические изображение и электронограммы меди после гидромеханического прессования с кручением: *а* — $\epsilon=6.5$; *б* — $\epsilon=4$

Таким образом, предложенный способ интенсивной деформации отличается высокой равномерностью деформации по сечению образцов, однако при больших деформациях скорость релаксационных процессов на поверхности выше, чем в центре. При накоплении деформации изменения структуры не носят однонаправленного характера, а проходят несколько этапов. Исследования показывают, что основные изменения происходят на ранних этапах деформации. При увеличении степени деформации начинаются процессы релаксации структуры, выражающиеся в развитии процессов рекристаллизации *in-situ*.

Наряду с экспериментальными исследованиями для уточнения динамики эволюции наноструктуры проводился компьютерный эксперимент. Как известно, плоскости максимальной упаковки обладают гексагональной симметрией такой же, как и двухмерный кристалл. Можно предположить, что деформационное поведение систем в этих двух случаях будет иметь одинаковый характер, и ограничиться для компьютерного анализа более простой двухмерной моделью кристалла. Кроме того, можно положить, что перестройка структуры это, прежде всего, геометрический эффект, слабо зависящий от деталей межчастичного взаимодействия. Поэтому для проведения компьютерного эксперимента был использован наиболее простой центрально-симметричный парный потенциал Леннарда-Джонса [12].

Образец из подвижных 18×18 частиц атомов меди (кристаллит) помещается в жесткую прямоугольную оболочку, состоящую из частиц той же меди. Линейный размер образца в исходном состоянии составляет приблизительно 4 нм. Оболочка подвергается сдвиговым деформациям посредством перемещения верхней и нижней ее граней в противоположных направлениях параллельно самим себе. Для моделирования многоциклового нагружения направление движения верхней и нижней граней жесткой оболочки периодически меняется на противоположное. Скорость перемещения граней равна 20 м/с, что соответствует скорости деформирования около 10^9 с^{-1} . Боковые грани

перемещаются таким образом, чтобы объем системы все время оставался замкнутым и постоянным.

В силу счетных трудностей осуществить эксперимент на большом количестве частиц адекватном размеру формируемых нанообластей в реальном эксперименте не представилось возможным. По этой причине возникла необходимость соблюдения некоторых соотношений подобия. Поскольку главным движущим началом преобразования любой микроструктуры является уровень неравновесности, поддерживаемый работой внешних сил, то было важно соблюсти подобие именно по этому параметру. Уровень неравновесности в нашем случае определяется скоростью деформирования. Известно, что равновесие в большой системе наступает значительно медленнее, чем в малой системе [13]. Если t_r — время релаксации системы, занимающей объем V , то при увеличении ее объема на величину ΔV , время релаксации увеличится пропорционально $\Delta V \times t_r$. Отсюда следует, что скорость релаксации системы связана с ее размерами логарифмической зависимостью: $\ln t_r = V$. Согласно этому для систем, отличающихся размерами в несколько раз, скорости деформирования должны отличаться на несколько порядков. Именно, по этой причине скорость деформирования в компьютерном эксперименте была выбрана столь высокой.

Для выяснения возможного влияния на процесс формирования нанообластей пор и свободных границ проводились эксперименты: с наличием свободного пространства между верхней и нижней частями оболочки и образцом; с наличием свободного пространства только между верхней частью оболочки и образцом; без наличия свободного пространства.

В последнем случае атомы оболочки вплотную соприкасаются с атомами образца. Во всех перечисленных случаях при деформировании по описанной выше схеме, исходно идеальная структура образца начинает перестраиваться таким образом, что в ней формируются новые зерна с осями симметрии, повернутыми на достаточно большие углы друг относительно друга. Зерна разделены сильно искривленной неравновесной границей. В процессе деформирования они многократно перестраиваются и меняют свою конфигурацию.

При наличии свободного пространства на различных стадиях деформирования появляются фрагменты зерна округлой формы с сильно искривленной границей, содержащей микропоры. Охлаждение образца позволило выделить возникшее зерно более отчетливо. Дальнейшее деформирование привело к разрушению возникшей структуры, и к формированию аналогичной. Уменьшение свободного пространства существенно не влияет на формирование зерна. Однако, при полном исключении свободного пространства в случае такая область не образуется вовсе. Из этого следует, что для перестройки структуры важны дополнительные степени свободы, связанные с микропористостью или свободными границами.

В результате проведенных исследований показано, что метод равноканального гидропрессования с кручением под давлением приводит к образованию в меди мелкокристаллической фрагментированной структуры. Полученные образцы отличались высокой равномерностью деформации по сечению образца. Основные изменения структуры и свойств наблюдаются при $e=2.35$, дальнейшее нарастание степени деформации не приводит к заметному увеличению количества субмикрокристаллических областей, а формирующиеся зерна характеризуются относительно большими размерами. Высокий уровень пластических характеристик меди после гидромеханического прессования с противодавлением и кручением ($e=6.5$) хорошо объясняется формированием мелкого зерна со средним размером 0.2–0,3 мкм с большеугловой разориентировкой. Дальней-

шая деформация приводит к получению более равномерной структуры по сечению образцов. Показано, что при нарастающей суммарной деформации свойства меди изменяются немонотонно, а формирование субмикроструктурной структуры проходит несколько стадий. Вероятно, особенности формирующейся на разных стадиях структуры возможно использовать для осуществления различных технологических операций.

Список литературы

1. Андреевский Р.А., Глезер А.М. Размерные эффекты в нанокристаллических материалах. 1. Особенности структуры, термодинамика. Фазовые равновесия. Кинетические явления // ФММ, 1999. — Т. 88. — № 1. — С. 50–73.
2. Гусев А.И. Эффекты нанокристаллического состояния в компактных материалах и соединения // Успехи физических наук, 1997. — Т. 168. — № 1. — С. 55–83.
3. Бейгельзимер Я.Е., Варюхин В.Н., Сынков В.Г., Сапронов А.Н., Сынков С.Г. Новые схемы накопления больших пластических деформаций с использованием гидроэкструзии // ФТВД, 1999. — Т.9. — №3. — С. 109–111.
4. Zhang K., Alexandrov I.v., Valiev R.Z., Lu K. Structural Characterization of nanocrystalline copper by means of X-ray diffraction // I.Appl.Phys, 1996. — V.80. — P. 5617–6524.
5. Валиев Р.З., Александров И.В. Наноструктурные материалы, полученные интенсивной пластической деформацией. — М.: Логос, 2000. — 272 с.
6. Гриднев В.Н., Гаврилюк В.Г., Мешков Ю.Е. Прочность и пластичность холоднодеформированной стали. — Киев.: Наукова думка, 1974. — 232 с.
7. Рыбин В.В. Большие пластические деформации и разрушение металлов. — М.: Metallurgia, 1986. — 279 с.
8. Селиванова О.В., Фарбер В.М. Механизмы возникновения зародышей динамической рекристаллизации в ходе холодной пластической деформации меди // Сб. VI Всероссийской конференции «Структура и свойства аустенитных сталей и сплавов. Россия. Екатеринбург, 2001. — С. 111.
9. Варюхин В.Н., Пашинская Е.Г., Бейгельзимер Я.Е. и др. Влияние отжига на структуру и свойства меди, полученной винтовой экструзией // Физика и техника высоких давлений, 2002. — Т.12. — № 3. — С. 18–27.
10. Александров И.В., Дубравина А.А. Формирование наноструктурного состояния в меди методом ИПД кручением // Сб. "Перспективные технологии физико-химической размерной обработки и формирования эксплуатационных свойств металлов и сплавов". Россия. Уфа, 2001. — С. 366–371.
11. Амирханов Н.М., Исламгалиев Р.К. Термозволюция УМЗ меди, полученной ИПД // Сб. "Перспективные технологии физико-химической размерной обработки и формирования эксплуатационных свойств металлов и сплавов". Россия. Уфа, 2001. — С. 402–407.
12. Метлов Л.С. Нелинейная динамика двумерной решетки. Стохастизация волн // ФТВД, 1997. — Т.7. — №3. — С. 89–97.
13. Базаров И.П. Термодинамика. — М.: Высшая школа, 1991. — 376 с.

© Варюхин В.Н., Пашинская Е.Г., Метлов Л.С.,
Морозов А.Ф., Бейгельзимер Я.Е., Сынков С.Г., 2003