

УДК 669.3:539.383-973:539.25

## **Влияние криогенной осадки на микроструктуру катаной мелкозернистой меди**

Т. Н. Конькова, С. Ю. Миронов, А. В. Корзников

*Учреждение Российской Академии Наук Институт проблем  
сверхпластичности металлов РАН*

E-mail: konkova\_05@mail.ru

### **Аннотация**

Исследована возможность существенного измельчения зерен в технически чистой меди путем криогенной осадки. Установлено, что эволюция структуры в целом определялась сплющиванием исходных зерен в ходе деформации. Анализ текстурных данных и спектра разориентировок показал, что основным механизмом пластического течения являлось обычное  $\{111\}<110>$  дислокационное скольжение при несущественном вкладе механического двойникования.

**Ключевые слова:** интенсивная пластическая деформация, трехосная осадка, криогенная деформация, медь, микроструктура, текстура, дислокационное скольжение

### **1. Введение**

Одним из перспективных путей развития современного материаловедения является устойчивый интерес к радикальному измельчению микроструктуры вплоть до субмикрокристаллических (СМК) и нанокристаллических (НК) размеров зерен. Считается, что это позволит существенно улучшить прочностные характеристики конструкционных материалов при низких температурах и пластических – при повышенных.

Наиболее практичным способом радикального измельчения микроструктуры является интенсивная пластическая деформация (ИПД) [1]. Однако методы ИПД способны эффективно измельчать микроструктуру большинства конструкционных материалов только до определенно малого размера зерен (обычно до СМК интервала), после чего процесс измельчения постепенно затухает [2, 3]. Причины этого явления не вполне ясны. Иногда это связывается с наступлением определенного равновесия между деформационным уменьшением зерен и их

термоактивированным ростом [4]. Таким образом, добиться гарантированного формирования реальных НК-структур посредством ИПД в большинстве случаев пока не удается, и нужно искать новые пути для достижения НК-диапазона размера зерен.

Одним из способов решения этой проблемы может быть деформация при очень низких температурах – так называемая криогенная деформация. Предполагается, что очень низкие температуры деформации исключают рост зерен и затрудняют перераспределение дислокаций (увеличив их плотность), что должно способствовать дальнейшему измельчению микроструктуры.

В работах, выполненных преимущественно на высокопластичной меди, была выявлена следующая картина эволюции микроструктуры в ходе криогенной деформации [4-6]. При относительно небольших степенях деформации отмечено интенсивное двойникование [5,6], хотя считается, что медь не склонна к механическому двойникованию. Криогенные двойники, как правило, являются очень тонкими (~ 50 нм) и часто объединены в целые колонии, которые эффективно фрагментируют исходные зерна [5,6]. Отмечается, что двойники сопряжены с матрицей обычным двойниковым ориентационным соотношением для кубических металлов [5,6]. Активизация двойникования объясняется подавлением поперечного скольжения дислокаций в экстремальных условиях криогенной деформации [6].

С увеличением степени деформации двойникование постепенно истощается, и на смену ему приходит образование полос сдвига [5, 6]. Эти полосы пересекают колонии двойников, что существенно искажает первоначальную форму двойников [5,6] и способствует дополнительному измельчению микроструктуры. Кроме того, предполагается также развитие адиабатических полос сдвига [5, 7]. Максимальная температура в этих

полосах оценивается в  $\sim 500\text{K}$ , что может привести к локальной рекристаллизации внутри них.

Активизация механического двойникования и образование полос сдвига позволяют предположить, что криогенная деформация, по-видимому, действительно имеет определенный потенциал для формирования НК-структуры в меди. В связи с этим микроструктуры криогенных деформаций заслуживают особо тщательного изучения.

Настоящая работа является частью широкомасштабного проекта по исследованию влияния различных типов криогенного нагружения на структуру и свойства технической чистой меди. В рамках этого проекта, в данной работе изучалась эффективность криогенной осадки для измельчения микроструктуры.

## 2. Методика исследования

Для исследования использовался горячекатаный пруток из технической чистой (99,9%) меди марки М1. С целью наибольшего измельчения исходного зерна, вырезанные из прутка заготовки диаметром 40 мм и длиной 70 мм были подвергнуты предварительной интенсивной «abc»-деформации (три осадки примерно на 40% по высоте вдоль трех ортогональных осей) в интервале температур 500 – 300 °С [8]. Из центральной (наиболее деформированной) части кованных заготовок были вырезаны цилиндрические образцы диаметром 24 мм и высотой 60 мм по схеме, показанной на рис. 1. В целях достижения большей макроскопической однородности деформации образцы были предварительно помещены в оболочку из стали 20 с толщиной стенки 8 мм.

После охлаждения в контейнере с жидким азотом до температуры  $-196\pm 10$  °С образцы были осаждены на 88% по высоте (истинная деформация  $e \sim 2, 2$ ) в воздушной атмосфере на гидравлическом прессе ПА-2638 при начальной скорости деформации  $\sim 6 \times 10^{-3} \text{ с}^{-1}$ .

Для предотвращения быстрого нагрева меди до комнатной температуры в ходе деформации использовались подкладные бойки из сплава ЖС6У, которые также охлаждались в контейнере с азотом. Между моментом извлечения образцов и бойков из контейнера и началом деформации проходило, в среднем, около 40 с; весь процесс осадки занимал около 2-3 мин. Таким образом, предполагается, что криогенные условия деформации были, в целом, обеспечены.

Микроструктуру в центральной (наиболее деформированной) части продольного сечения образцов исследовали методами автоматического анализа картин дифракции обратно рассеянных электронов (EBSD) и просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). Перед исследованием микроструктуры образцы подвергались электролитической полировке в 7% растворе  $H_3PO_4$  в дистиллированной воде при комнатной температуре и напряжении от 10 до 25 В.

Для ПЭМ был использован микроскоп JEM-2000EX, работающий при ускоряющем напряжении 160 кВ. EBSD-анализ проводился при помощи программного обеспечения TSL OIM<sup>TM</sup>, установленного на сканирующем электронном микроскопе с полевым катодом Hitachi S-4300SE. EBSD-сканирование осуществлялось посредством автоматического перемещения пучка электронов по гексагональной сетке. Были получены EBSD-карты, состоящие из ~400.000–500.000 пикселей и содержащие от нескольких сотен до полутора десятка тысяч зерен. Шаг сканирования (размер пикселя) варьировался от 50 до 500 нм. В целях минимизации ошибки каждая электронограмма автоматически индицировалась по семи Кикучи-линиям. Доля успешно индицированных электронограмм варьировалась от 99.5% до ~ 100% от их общего числа. Неиндицированные электронограммы, а также электронограммы с низкой достоверной вероятностью индицирования обычно соответствовали регионам возле границ зерен. Все мелкие зерна, соответствующие 3 и

менее пикселям были автоматически исключены из рассмотрения. При вычислении разориентировки из всех кристаллографически эквивалентных её описаний использовалось описание с минимальным углом. Разориентировка вычислялась между соседними (смежными) точками сканирования. Учитывая погрешности EBSD-метода, не рассматривались малоугловые границы с разориентировкой меньше  $2^\circ$ . Все приведенные в статье EBSD-карты и ПЭМ-фотографии ориентированы таким образом, что ось осадки (последней осадки в случае исходного состояния) является вертикальной, а радиальное направление образца – горизонтальным. В качестве критерия мало- и большеугловых границ (МУГ и БУГ соответственно) использовалась разориентировка  $15^\circ$ . Распределение границ по углам разориентировки приводилось по их длине. Размер структурных элементов (зерен/субзерен) определялся методом секущих.

### **3. Экспериментальные результаты и их обсуждение**

#### **3.1. Исходное состояние материала**

Микроструктура и текстура исходного состояния приведены на рис. 2. На EBSD карте, показанной на рис. 2, а, МУГ изображены тонкими светлыми, а БУГ – толстыми темными линиями. Варьирование оттенков серого цвета от зерна к зерну соответствует изменению их кристаллографической ориентировки. Видно, что структура является довольно однородной в пределах карты, и в ней преобладают относительно равноосные зерна. Тем не менее, в структуре угадывается определенная строчечность в радиальном направлении. Средний размер зерен в направлении последней осадки составляет 1.6 мкм, а в радиальном – 1.8 мкм. В спектре разориентировок преобладают БУГ, удельная доля которых составляет 69%. Следует отметить, что МУГ распределены довольно неоднородно, преимущественно концентрируясь в относительно крупных вытянутых зернах.

Типичная ПЭМ-фотография микроструктуры показана в правом верхнем углу рис. 2, а. Видно, что границы зерен довольно прямые и тонкие. Подавляющее большинство дислокаций в интерьере зерен организованы в дислокационные границы, плотность свободных дислокаций визуалью низкая.

Спектр разориентировок (рис. 2, б) характеризуется ярко выраженным малоугловым максимумом, а также повышенным содержанием двойниковых границ  $60^\circ\langle 111 \rangle$ , доля которых составляет  $\sim 5\%$ . Уместно упомянуть, что повышенное содержание двойников отжига в микроструктуре меди обычно увязывается с рекристаллизацией и ростом зерен.

Прямая полюсная фигура  $\{100\}$  на рис. 2, в свидетельствует о слабой текстуре (максимальная интенсивность всего в 3 раза превышает уровень фона), причем направление  $\langle 100 \rangle$  близко к оси последней осадки. Эта текстура близка к *текстуре куба*  $\{100\}\langle 100 \rangle$ , которая обычно образуется в ходе рекристаллизации ГЦК металлов. Таким образом, в целом микроструктуру можно квалифицировать как частично рекристаллизованную.

## **3.2. Криогенная осадка**

### ***3.2.1 Морфология микроструктуры и размер зерен***

#### ***3.2.1.1. EBSD анализ***

Как видно из обзорной EBSD карты на рис. 3, а, микроструктура после криогенной осадки является довольно однородной. Зерна в основном значительно вытянуты в направлении, примерно перпендикулярном оси сжатия. Средний размер зерен, измеренный в радиальном направлении образца, составляет около 0.7 мкм, а в направлении осадки – 0.4 мкм. Таким образом, криогенная осадка не привела к формированию желаемой НК структуры.

Следует подчеркнуть, что результаты приведенных выше измерений не отражают истинной асимметрии формы зерен ввиду того, что зерна ориентированы под некоторым углом к кромкам карты. Как следствие, истинный продольный размер зерен должен быть больше, а поперечный - меньше. Специфическая морфология микроструктуры позволяет предположить, что исходные зерна сплющивались в ходе деформации вместе с образцом в соответствии с известным постулатом Тейлора. Иными словами, геометрический эффект деформации играл значительную роль в эволюции зеренной структуры.

На высокоразрешающей EBSD карте, полученной с шагом сканирования 50 нм (рис. 3, б), показаны только границы разориентации: МУГ - тонкими серыми линиями и БУГ – толстыми темными линиями. Следует отметить довольно развитую сеть МУГ, доля которых достигает ~ 50%. МУГ в большинстве случаев являются довольно короткими и изогнутыми, преимущественно тяготеют к границам исходных зерен и характеризуются относительно небольшим углом разориентировки. Следует особо подчеркнуть, что для структуры *не* является характерным наличие протяженных и прямолинейных МУГ, имеющих значительную разориентировку и рассекающих исходные зерна на четко очерченные фрагменты. Иными словами, процесс фрагментации представляется в значительной мере подавленным.

В целом можно заключить, что криогенная осадка сама по себе не является эффективной для формирования НК структуры в меди. Эволюция зеренной структуры, вероятно, в основном контролируется геометрическим сжатием зерен, что ведет к изменению их формы, но не меняет объема. Иными словами, криогенная осадка меди не ведет к существенному измельчению микроструктуры как к таковому.

В качестве интересной особенности микроструктуры можно отметить наличие некоторой фракции равноосных зерен (пример указан стрелкой на

рис. 3, б), причем подобные зерна зачастую практически не содержат субграниц. Происхождение этих зерен очень трудно объяснить геометрическими условиями деформации. Это дает основание предположить, что геометрический эффект деформации был не единственным (хотя и, по-видимому, основным) механизмом эволюции микроструктуры. Впрочем, удельная доля равноосных зерен представляется относительно низкой. Таким образом, вклад этого «дополнительного» механизма в структурообразование был, скорее всего, мал, вне зависимости от его природы.

### **3.2.1.2. ПЭМ анализ**

Морфология структуры, выявленная методом ПЭМ (рис. 4, а), в целом идентична наблюдаемой посредством EBSD (рис. 3). Средняя толщина кристаллитов, измеренная методом ПЭМ, составляет порядка 0.1 мкм. По данным EBSD, среднее расстояние между любыми границами разориентации (как МУГ, так и БУГ) близко к 0.2 мкм. С учетом низкой статистической выборки ПЭМ, соответствие между двумя способами измерения размера зерен можно признать удовлетворительным.

Следует отметить, что ПЭМ, также как и EBSD, выявила наличие равноосных кристаллитов, практически не содержащих субструктуры (рис. 4, б). В качестве важной особенности тонкой структуры можно также выделить неожиданно низкую плотность дислокаций в пределах зерен. Все это позволяет предположить, что интенсивность процессов возврата при криогенной деформации была, по-видимому, выше, чем ожидалась. К подобному заключению пришли также авторы работы [4], исследовавшие криогенную деформацию алюминия.

Также следует упомянуть, что ПЭМ практически не выявила кристаллитов, похожих на двойники. Таким образом, роль механического



двойникования в условиях эксперимента была, вероятно, значительно ниже, чем следовало ожидать, исходя из анализа работ [5, 6].

### ***3.2.2. Спектр разориентировок***

Спектр разориентировок, полученный EBSD, показан на рис. 5. Распределения границ по углам и осям разориентировки даны соответственно на рис. 5. Для сравнительных целей произвольное распределение разориентировок также приведено на рис. 5, а.

Очевидно, что экспериментальное распределение границ по углам разориентировки существенно отличается от произвольного (см. рис. 5, а), в основном вследствие наличия ярко выраженного малоуглового максимума в реальном спектре разориентировок. Данный пик фактически отражает развитую сеть МУГ в пределах зерен (рис. 3, б). Интересно также отметить резкий перепад между мало- и большеугловыми сегментами экспериментального спектра разориентировок (рис. 5, а, указано стрелкой). Очевидно, имеется причина, препятствующая плавному превращению МУГ в БУГ (и, таким образом, измельчению микроструктуры). Возможно, это связано с низкой подвижностью дислокаций, затрудняющей их быструю реорганизацию в границы деформационного происхождения. Распределение границ по осям разориентировки (рис. 5, б) в целом близко к хаотичному.

Следует отметить также очень низкую долю двойниковых разориентировок  $60^\circ\langle 111 \rangle$ , составляющих всего  $\sim 2\%$  от общей протяженности границ. Таким образом, кристаллографические измерения подтверждают вывод о незначительной роли двойникования в условиях эксперимента.

### ***3.2.3. Текстура***

По рис. 6 можно судить о хорошем соответствии между теоретической обратной полюсной фигурой, рассчитанной по модели Тейлора для меди после 100% деформации осадкой [9], и экспериментальной, полученной методом EBSD из центральной части деформированного образца. В обоих случаях присутствует аксиальная текстура, где направление  $\langle 101 \rangle$  тяготеет к оси осадки. Исходя из этого, можно предположить, что основным механизмом пластического течения в условиях эксперимента было традиционное для ГЦК металлов  $\{111\}\langle 110 \rangle$  дислокационное скольжение, а вклад механического двойникования был очень мал. Таким образом, ни криогенные условия деформации, ни исходная мелкозернистая структура не привели к изменению основного дислокационного механизма пластического течения.

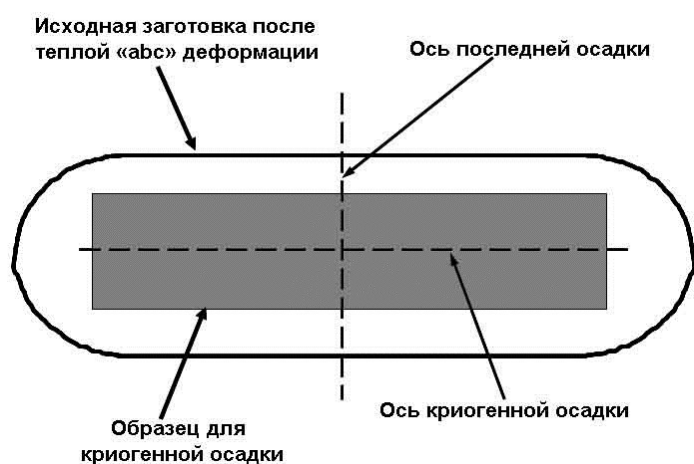
### **Заключение**

Эволюция микроструктуры в ходе криогенной осадки технической чистой меди контролируется геометрическими условиями деформации, что ведет к сплющиванию зерен в ходе обжатия. Процесс фрагментации структуры подавлен. Основным механизмом деформации является «обычное» для ГЦК металлов  $\{111\}\langle 110 \rangle$  дислокационное скольжение, а вклад механического двойникования невелик.

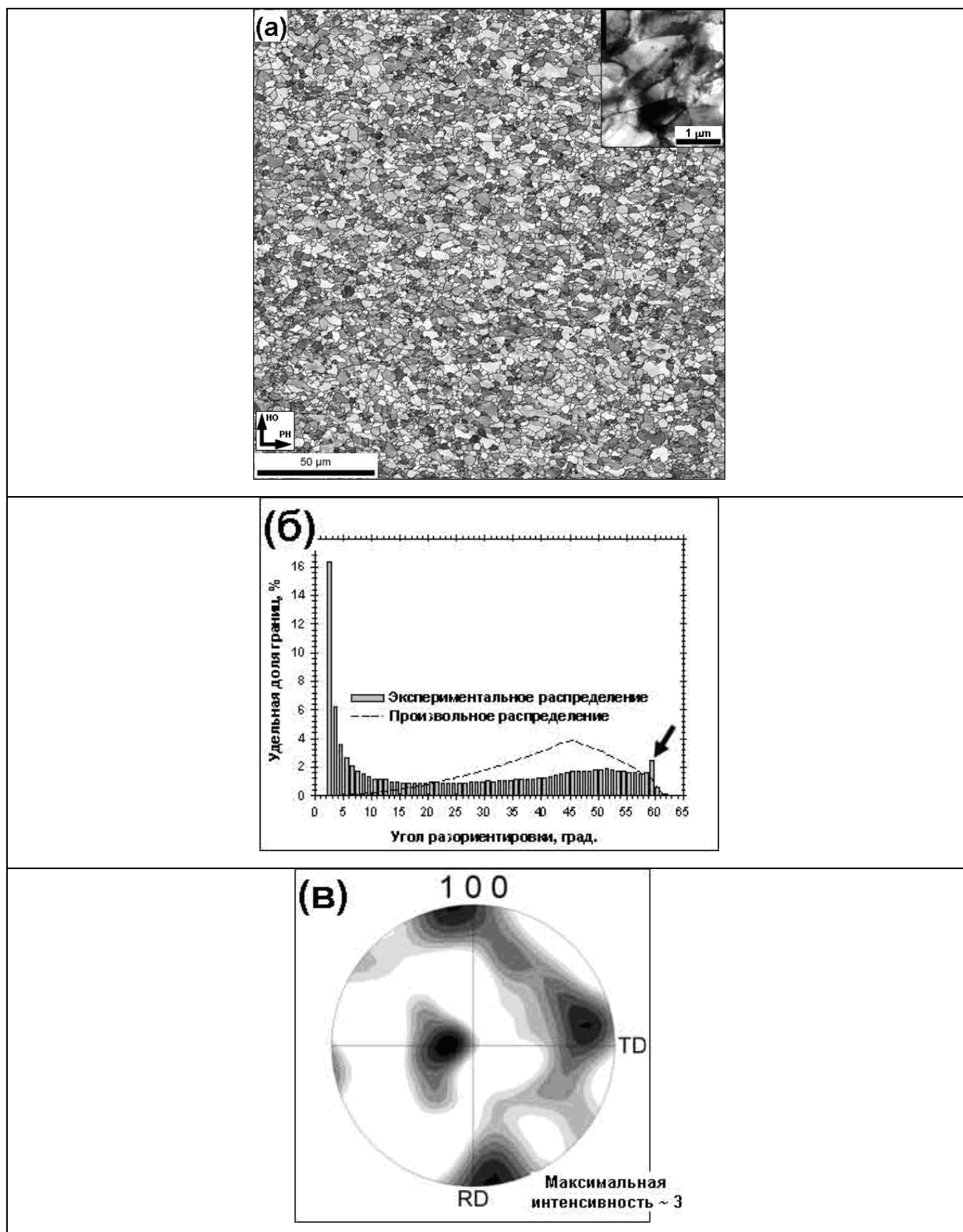
Авторы благодарны профессору Салищеву Г.А. за идею данного исследования. Они также очень признательны к.т.н. Галееву Р.М. и к.т.н. Валиахметову О.Р. за осуществление теплой «abc»-деформации, а также к.ф.-м.н. Даминову Р.Р. за помощь в проведении экспериментов по криогенной осадке.

### **5. Список литературы**

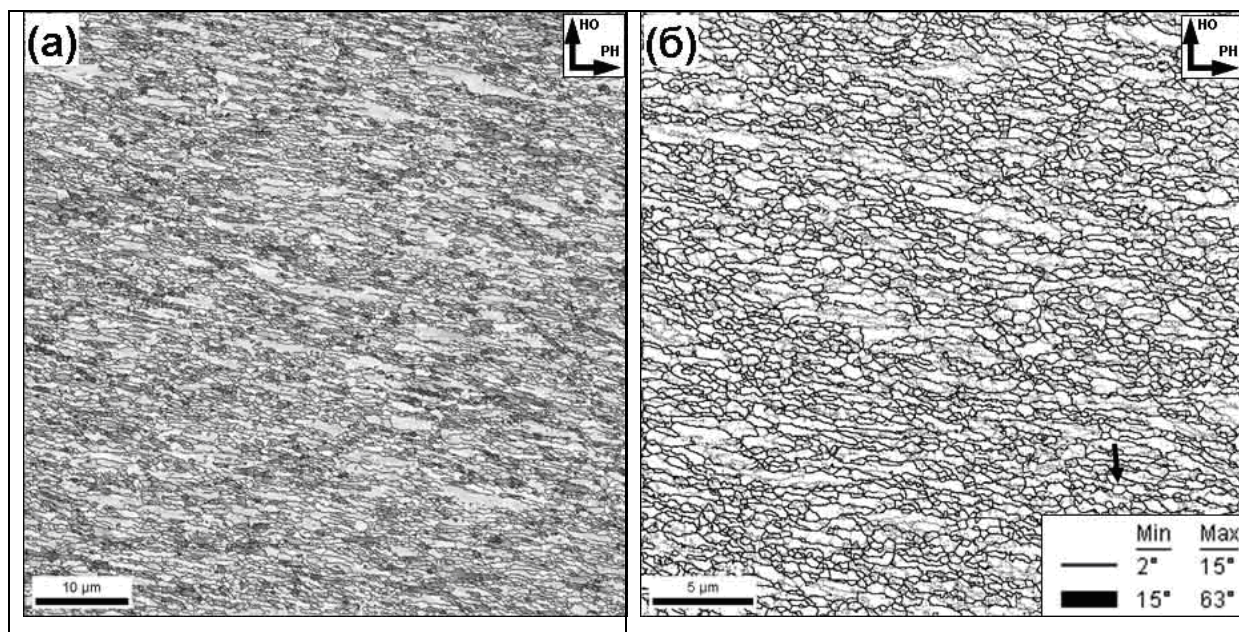
- [1] Валиев Р.З, Александров И.В. Наноструктурные материалы, полученные интенсивной пластической деформацией. - М.: Логос, 2000. - 272 с.
- [2] P.B. Prangnell, J.R. Bowen, P.J. Apps, Ultra-fine grain structures in aluminium alloys by severe deformation processing, *Mater. Sci. Eng. A* 375–377 (2004) 178–185.
- [3] F. J. Humphreys, P. B. Prangnell, J. R. Bowen, A. Gholinia and C. Harris, Developing stable fine-grain microstructures by large strain deformation, *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* (1999) **357**, 1663-1681.
- [4] Y. Huang, P.B. Prangnell, The effect of cryogenic temperature and change in deformation mode on the limiting grain size in a severely deformed dilute aluminium alloy, *Acta Mater.* 56 (2008) 1619–1632.
- [5] Y.S. Li, N.R. Tao, K. Lu, Microstructural evolution and nanostructure formation in copper during dynamic plastic deformation at cryogenic temperatures, *Acta Mater.* 56 (2008) 230–241.
- [6] Y. Zhang, N.R. Tao, K. Lu, Mechanical properties and rolling behaviors of nano-grained copper with embedded nano-twin bundles, *Acta Mater.* 56 (2008) 2429–2440.
- [7] J. A. Hines and K. S. Vecchio, Recrystallization kinetics within adiabatic shear bands, *Acta Mater.* 45 (1997) 635-649.
- [8] Dobatkin S.V., Salischev G.A., Kuznetsov A.A., Kon'kova T.N. Submicrocrystalline structure in copper after different severe plastic deformation schemes, *Materials Science Forum* 558-559 (2007) 189-194.
- [9] S. Ahzi, S. M'Guil, A new intermediate model for polycrystalline viscoplastic deformation and texture evolution, *Acta Mater.* 56 (2008) 5359-5369.



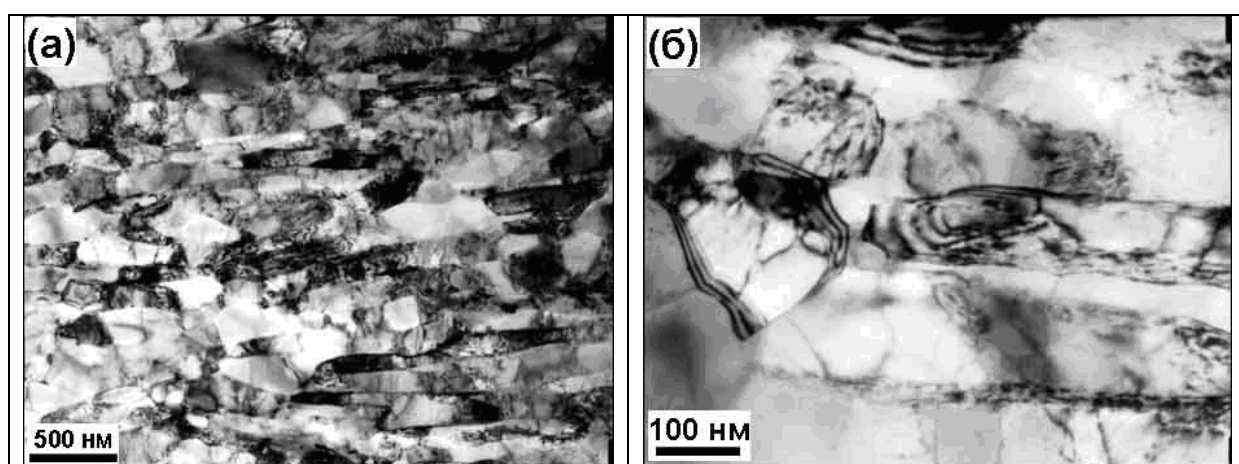
**Рис. 1.** Т. Н. Конькова, С. Ю. Миронов, А. В. Корзников. Влияние криогенной осадки на микроструктуру катаной мелкозернистой меди.



**Рис. 2.** Т. Н. Конькова, С. Ю. Миронов, А. В. Корзников. Влияние криогенной осадки на микроструктуру катаной мелкозернистой меди.



**Рис. 3.** Т. Н. Конькова, С. Ю. Миронов, А. В. Корзников. Влияние криогенной осадки на микроструктуру катаной мелкозернистой меди.



**Рис. 4.** Т. Н. Конькова, С. Ю. Миронов, А. В. Корзников. Влияние криогенной осадки на микроструктуру катаной мелкозернистой меди.



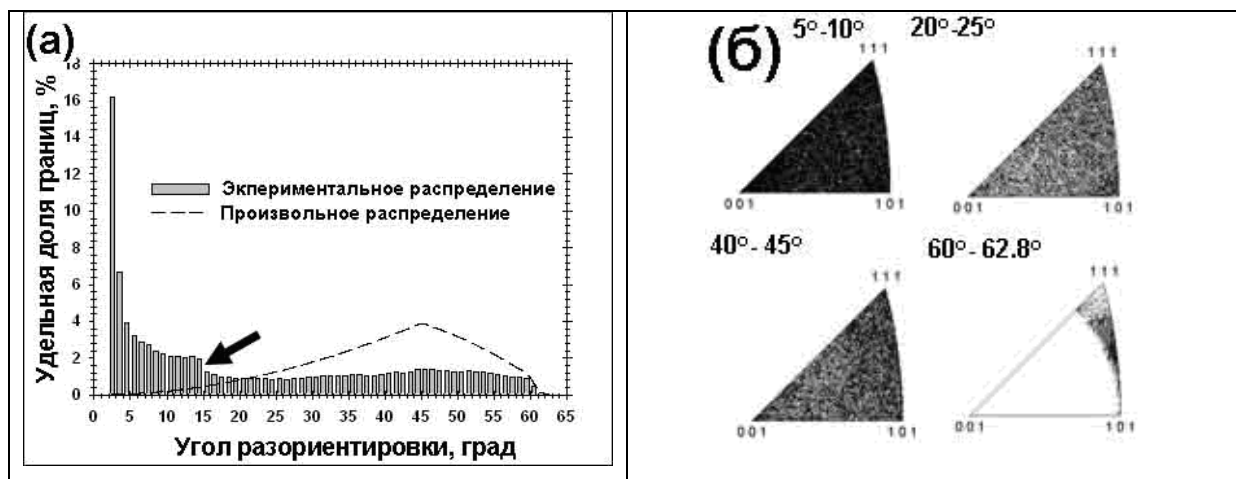


Рис. 5. Т. Н. Конькова, С. Ю. Миронов, А. В. Корзников. Влияние криогенной осадки на микроструктуру катаной мелкозернистой меди.

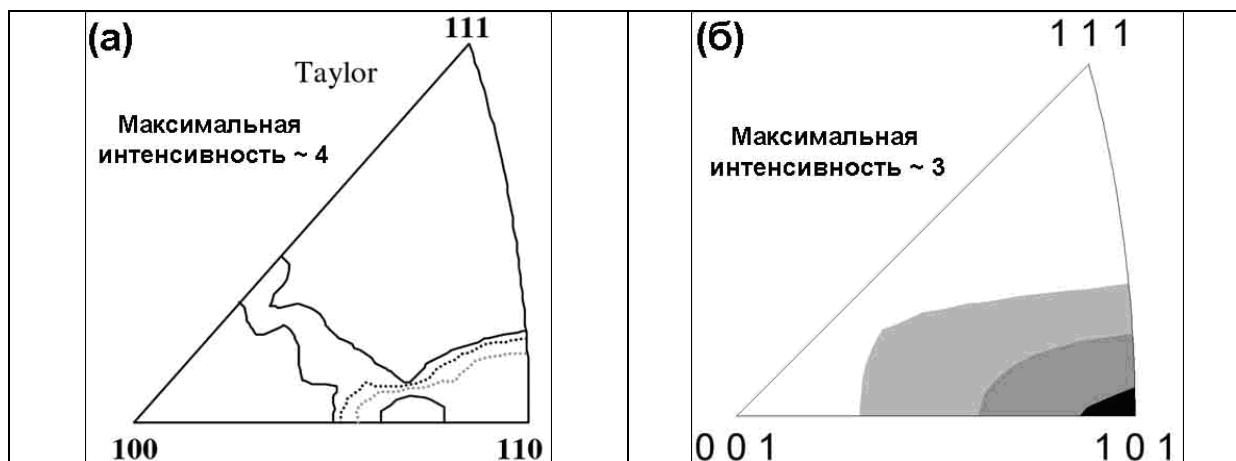


Рис. 6. Т. Н. Конькова, С. Ю. Миронов, А. В. Корзников. Влияние криогенной осадки на микроструктуру катаной мелкозернистой меди.