PACS: 81.40.-x

С.А. Фирстов, Ю.Н. Подрезов, Н.И. Даниленко, Е.М. Борисовская, Н.В. Минаков

РОЛЬ ПРОЦЕССОВ РЕЛАКСАЦИИ В УПРОЧНЕНИИ НАНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ, ПОЛУЧЕННЫХ ГЛУБОКОЙ ПЛАСТИЧЕСКОЙ ДЕФОРМАЦИЕЙ

Институт проблем материаловедения НАН Украины 03142, г. Киев, ул. Кржижановского, 3

Статья поступила в редакцию 8 апреля 2003 года

Проанализированы особенности протекания процессов возврата при упрочнении материалов в области средних и больших деформаций и определена их роль в структурообразовании и формировании свойств. Показано, что закономерности изменения механических свойств деформированного материала определяются эффектами релаксации напряжений деформационной и тепловой природы.

В последнее десятилетие резко возрос интерес к материалам с нанокристаллической структурой. Хотя несомненный приоритет здесь принадлежит изделиям функционального назначения, используемым для разработки миниатюрных электронных схем, механическое поведение этого класса объектов также является предметом пристального внимания исследователей. Согласно физической теории прочности диспергирование кристаллической структуры приводит к существенному упрочнению материала с одновременным повышением его низкотемпературной пластичности. Экстраполяция уравнения Холла–Петча

$$\sigma_{\rm ysl} = \sigma_0 + k_y d^{-1/2} \tag{1}$$

(где σ_{ysl} – предел текучести, σ_0 – сопротивление трения решетки, k_y – коэффициент, характеризующий способность границы передавать деформацию, d – размер зерна) или аналогичной зависимости для субзерен деформационного происхождения

$$\sigma_{\rm vsl} = \sigma_0 + k_{\rm v} d^{-1} \tag{2}$$

на наноразмеры дает очень высокие значения упрочнения. Например, для железа $\sigma_{vsl} = 6000$ MPa при d = 10 nm (рис. 1).

Физика и техника высоких давлений 2003, том 13, № 3



Рис. 1. Влияние размера зерна на предел текучести сильнодеформированного армко-железа после РКУпрессования (о) и волочения (•)

К сожалению, эти теоретические предсказания не подтверждаются экспериментально. Результаты испытаний по исследованию структурной чувствительности сильнодеформированных проволок из малолегированных сталей, выполненных в 60-70-е гг., обобщены Томпсоном в работе [1]. В ней автор сделал важные выводы о взаимосвязи процессов структурообразования и упрочнения при больших пластических деформациях. Во-пер-вых, он обнаружил тенденцию к смене закона упрочнения от соотношения (1) к зависимости (2) при размерах зерен меньше 0.4 ит и предложил обобщенную схему такого перехода. Во-вторых, предсказал теоретическую возможность полу-

чения сверхвысокой прочности в нанокристаллическом железе. Об этом свидетельствует экстраполяция экспериментальных зависимостей на малые значения размеров зерен (рис. 1). И, в-третьих, показал практическую невозможность реализовать в железе деформационные структуры с размером зерна меньше 0.1 µm.

Именно последний экспериментальный факт ограничил возможности использования деформационного упрочнения железа для получения сверхпрочной проволоки. В дальнейшем проблема получения высокопрочной проволоки была решена за счет использования механизма комплексного упрочнения на сильнодеформированных ($\sigma_{ysl} = 3000-6000$ MPa) легированных сталях [2]. При этом размер структурного элемента в таких сталях тоже редко достигает величины меньше 0.1 µm.

Существуют две основные модели, объясняющие ограничения в измельчении структуры при пластической деформации. Одна основана на представлениях о возврате структуры в ходе пластической деформации [1–3]. Согласно этой модели аннигиляция дислокаций на границах ячеек постепенно приводит к исчезновению одних границ и к увеличению угла разориентировки других. В работе [3] Лангфорд с сотрудниками показали, что процессы возврата активизируются с некоторой критической степенью деформации e_c . Начиная с этой деформации, относительное количество ячеек f (отнесенное к начальному количеству ячеек) в поперечном сечении деформированного образца начинает резко сокращаться (рис. 2). При этом уменьшение размера ячеек с ростом деформации резко замедляется. Предложенная модель все же сохраняет определенную надежду на получение наноструктуры в условиях глубокой пластической деформации при целенаправленном воздействии на процессы возврата.





Рис. 3. Кривые упрочнения деформированной железной проволоки, испытанной на растяжение после каждого прохода волочения при 20°С [3]

Вторая модель, разработанная В.В. Рыбиным с сотрудниками [4], основана на анализе микромеханических напряжений вокруг дислокаций. Согласно данной модели размер структурного элемента деформационного происхождения не может быть меньше определенной величины (для ОЦК-металлов – 0.2 µm). При достижении такого размера в процесс деформации включаются ротационные моды деформации, не требующие диспергирования структуры. В определяющие уравнения модели входят некоторые константы материала (вектор Бюргерса, теоретическая прочность на сдвиг, энергия дефекта упаковки и т.п.), допускающие вариацию критического размера ячейки в зависимости от материала. Поэтому положения данной теории не противоречат результатам экспериментов последних лет, в которых на сплавах на основе Al, Ni методом PKУ-прессования были получены деформационные структуры с размером субзерен 30–50 nm.

Таким образом, обе модели дают достаточно пессимистические прогнозы относительно возможностей диспергирования кристаллитов деформационного происхождения до очень малых значений.

Отмеченные особенности структурообразования деформированных материалов предопределяют их механические свойства. Напомним, что в классических работах по структурной чувствительности кривых деформационного упрочнения [5–7] структурные изменения в деформированном материале сопоставляются с характером кривой упрочнения, получаемой непосредственно в процессе нагружения. Иными словами, каждое структурное состояние материала следует из предыдущего состояния, а деформационное упрочнение является следствием непрерывной эволюции структуры.

Кривые упрочнения обычно определяют по результатам испытаний на одноосное растяжение. Характер этих кривых достаточно хорошо согласуется со структурными изменениями, происходящими при малых и средних (e < 0.3) степенях деформации [5,6]. Однако при появлении в образце шейки (1.0 > e > 0.3) анализ результатов значительно осложняется из-за трехосного напряженного состояния, учитываемого напряжением Бриджмена, и процессов разрыхления в очагах предразрушения. При деформациях e > 1.5 задача ста-

новится неразрешимой ввиду разрушения образца.

Для преодоления этих ограничений при анализе кривых упрочнения сильнодеформированных материалов часто используется методология, предложенная Лангфордом в работе [3]. В основе метода лежит известный постулат механики деформирования, согласно которому истинная кривая упрочнения, получаемая при непрерывном нагружении, может быть заменена линией, огибающей кривые повторного нагружения образцов, предварительно подвергнутых различным степеням деформации (рис. 3).

Однако строгое выполнение этого постулата вызывает сомнения для сильнодеформированных материалов, особенно в тех случаях, когда перестройка структуры сопровождается поперечным скольжением [8]. Кроме того, деформированные материалы при повторном растяжении склонны к локализации деформации (шейкооб-разованию) уже на ранних стадиях нагружения, что также искажает результаты повторного деформирования.

Эксперименты, выполненные на Al и Ti методом одноосного сжатия, показали, что упомянутый выше постулат механики достаточно хорошо выполняется лишь для материалов с малой склонностью к поперечному скольжению в диапазоне малых и средних деформаций. Например, он достаточно надежно подтвердился в наших экспериментах на интерметаллидах системы Al–Ti–Cr, проведенных в условиях одноосного сжатия (рис. 4,*a*, кривые 1-3). Но этот постулат не выполняется для материалов, имеющих склонность к поперечному скольжению, что подтвердили результаты исследований алюминия технической чистоты (рис. 4, δ). Кривая, полученная при однократном нагружении (рис. 4, δ , кривая 1), была сравнена с аналогичны-

ми кривыми после второго (кривая 3) и третьего (4) сжатия. Эксперименты показали, что после разгрузки и повторной нагрузки образец демонстрирует более низкие предел текучести и коэффициент упрочнения.



Рис. 4. Кривые упрочнения сплава Al–Ti–Cr (*a*) и Al (*б*): *1*, *2* – непрерывная деформация; *3–5* – повторная

К сожалению, проверить работу постулата в условиях непрерывного нагружения при больших (> 50%) степенях деформации не представляется возможным, поскольку при сжатии нарушаются условия одноосной деформации, а при растяжении начинается процесс шейкообразования. С целью получения единой кривой упрочнения для сильнодеформированного алюминия в условиях единой схемы нагружения мы сошлифовали боковые грани деформированного образца, снова придав ему форму прямоугольника, и построили суммарную кривую упрочнения путем состыковки результатов последовательных нагружений.

Из рис. 4,6 видно, что кривая деформационного упрочнения после повторного сжатия (кривая 5) располагается значительно ниже первичной кривой (1), полученной при непрерывном нагружении. Однако ее исходная позиция совпадает с концом предыдущей кривой (4), полученной при повторном деформировании. Таким образом, суммарная кривая упрочнения предварительно продеформированного материала может быть построена объединением результатов нескольких последовательных циклов нагружения. Коэффициент деформационного упрочнения в этом случае оказывается значительно ниже, чем при непрерывном нагружении из-за процесса возврата.

С целью продления кривых упрочнения в область средних и больших деформаций нами предложена методика многократного повторного сжатия продеформированных образцов. Для того чтобы перед повторным нагружением образцам придать требуемую форму, их сошлифовывали (или срезали искрорезным станком) в поперечном направлении до восстановления требуемого соотношения между высотой и поперечными размерами (высота образца в 1.5–2 раза больше поперечных размеров). Естественно, что при каждом следующем испытании деформируемый образец уменьшал свои размеры. Поэтому, чтобы достичь высоких степеней деформации, исходный образец изготавливали достаточно большим, благодаря чему после 4–5 повторных сжатий в нем накапливалась $e \sim 1.5-2$.

Эксперименты выполняли на титане технической чистоты. Первоначально получили кривую упрочнения титана при непрерывном сжатии до деформации $\varepsilon < 30\%$ (рис. 5,*a* кривая *1*), которую сопоставили с кривыми повторного нагружения при малых деформациях. Кривые упрочнения 2 и 3 на рис. 5,*a* построили по результатам испытания образца с разгрузкой после каждых 10% деформации (повторные нагружения осуществляли без извлечения образца из испытательной машины). Эти кривые после повторного нагружения проходят несколько ниже, чем кривая *1*, характеризующая упрочнение титана при непрерывном сжатии. Как и в случае алюминия, на титане технической чистоты разгрузка образца и его повторное нагружение

Физика и техника высоких давлений 2003, том 13, № 3



Рис. 5. Кривые деформационного упрочнения титана при сжатии (*a*) без корректировки размеров (1 – непрерывное нагружение; 2, 3 – повторное нагружение) и повторном нагружении (δ) с корректировкой размеров (номер кривой соответствует количеству нагружений)

привели к уменьшению параметров упрочнения уже на начальных стадиях деформаций. Эффект, по-видимому, связан с релаксацией напряжений и частичной перестройкой структуры при разгрузке образца. Отметим, что на ранних стадиях упрочнения этот эффект незначителен.

Для построения кривых упрочнения при повторном нагружении до больших степеней деформации использовали исходный титановый образец размерами $15 \times 9 \times 9$ mm, который испытывали на сжатие до относительной деформации 30%, записывая кривую упрочнения (рис. 5, δ , кривая 1). После этого деформированный образец разгружали и на искрорезном станке ему снова придавали форму параллелепипеда ($10 \times 6 \times 6$ mm). Затем его снова испытывали на сжатие, записывая кривую упрочнения (рис 5, δ , кривая 2). Такую процедуру повторяли еще 3 раза (рис. 5, δ , кривые 3–5), после чего высота образца уменьшалась до 2 mm, что позволило накопить в нем деформацию сжатия e = 1.7. Соотношение высоты с поперечными размерами подбирали так, чтобы после каждого сжатия образец превращался приблизительно в куб. В этом случае форма образца оказывала минимальное влияние на вид кривой упрочнения.

Кривые упрочнения на графике (рис. 5, δ) располагаются таким образом, что начальная точка каждой кривой повторного сжатия соответствует величине полной предшествующей деформации образца (подобно методологии Лангфорда [3]). При таком варианте расположения кривых повторного нагружения удается построить результирующую кривую упрочнения при нагружении сжатием по точкам, соответствующим пределу текучести. Используя методологию Лангфорда [3], можно построить также огибающую кривых упрочнения образцов, подвергнутых повторному сжатию. Соответствующие кривые представлены на рис. 5 штриховой и штрихпунктирной линиями. Из анализа этих кривых следует, что после 5 повторных испытаний образца на одностороннее сжатие в нем достигается предел текучести 880 MPa, а максимальное деформирующее напряжение в образцах на сжатие приближается к 1000 MPa. Эти величины сравнимы с наиболее высокими значениями упрочнения деформированного титана, полученными на образцах после интенсивной пластической деформации [9,10] методами РКУ-прессования и винтовой экструзии. Отметим, однако, что указанные величины существенно уступают результатам, полученным при одноосном растяжении без разгрузки.



Рис. 6. Кривая деформационного упрочнения титана при одноосном растяжении: ■ – исходная кривая; ● – кривая, полученная с учетом перенапряжения в шейке

Кривая упрочнения образцов, испытанных на одноосное растяжение, представлена на рис. 6. На начальных стадиях нагружения (до момента шейкообразования) кривая упрочнения может быть аппроксимирована степенной зависимостью $\sigma_{true} =$ $= Ne^n$, где N и n – соответственно коэффициент и показатель деформационного упрочнения. На стадии шейкообразования она лучше аппроксимируется линейной зависимостью. Величина истинного разрушающего напряжения достигает величины 1450 MPa.

Как известно, на стадии шейкообразования полученные значения деформирующего напряжения несколько завышены за счет трехосности напряженного состояния в шейке. Величину этого перенапряжения

Бриджмен [11] предложил определять из выражения

$$\sigma_{XV} = \sigma(1 - \beta), \qquad (4a)$$

в котором

$$\beta = (1 + 4R/d)[\ln(1 + d/4R)]), \qquad (46)$$

где D – диаметр образца в шейке, а R – радиус профиля шейки. Путем фотометрирования было установлено, что в момент разрушения d = 1.54 mm, а R = 3 mm. Подставляя эти значения в уравнение (4б), получаем величину $\beta = 0.12$, т.е. в момент разрушения перенапряжение не превышает 12% от найденного значения напряжения. Текущие значения перенапряжения еще ниже. С учетом эффекта Бриджмена в момент разрушения, наступающий при истинной деформации e = 1.75, в непрерывно нагружаемом образце достигается напряжение $\sigma_{true} = 1250$ MPa, что значительно большее, чем максимальные значения при повторном нагружении образцов, продеформированных сжатием, и чем значения прочности сильнодеформированного титана технической чистоты [11].

Несомненно, в данном случае следует учитывать различия в схемах нагружения и текстуре образцов, однако только этим нельзя объяснить слишком большую разницу в свойствах образцов при непрерывном нагружении и после повторной деформации. По-видимому, наиболее существенным фактором, способствующим разупрочнению, являются процессы релаксации структуры, которые идут не только во время деформации, но и в процессе разгрузки образца. Законы релаксации структуры и роль внутренних напряжений в процессе снятия нагрузки с сильнодеформированного образца, а также закономерности восстановления структуры при повторном нагружении требуют тщательного изучения.

Еще более существенная разница проявляется при сопоставлении кривых упрочнения, полученных при одноосном растяжении и сжатии, с результатами упрочнения этого материала методами глубокой прокатки (рис. 6) [12]. Технически чистый титан к моменту разрушения упрочняется: при одноосном растяжении – до 1250 МРа, при многократном сжатии – до 800– 1000 МРа, а в образцах, предварительно деформированных прокаткой, упрочнение не превышает 600–700 МРа. По-видимому, важным фактором, активизирующим процессы разупрочнения, является разогрев образца в процессе «холодной» деформации, который имеет место при глубокой прокатке.

Для того чтобы наглядно проиллюстрировать роль нагрева при деформации, нами было проведено тестирование на твердость продольных сечений образцов, предварительно испытанных на растяжение при температурах 20; 100 и 200°С. Образцы с шейкой разрезали в продольном направлении и методом фотометрирования определяли деформацию в каждом сечении. Измерения проводили в восьми выбранных сечениях, находящихся на разных расстояниях от центра шейки. Для каждого сечения рассчитывали величину истинной деформации.

В выбранных сечениях от центра образца к краю с помощью прибора ПМТ-3 был нанесен ряд уколов. Чтобы поля от соседних уколов не перекрывались, расстояние между уколами должно составлять не менее 5 размеров отпечатков. Микротвердость измеряли при нагрузке 20 g, размер отпечатков составлял 10–20 µm. Поэтому расстояние между уколами составляло примерно 120 µm, а количество уколов в каждом сечении – от 9 до 17 (в зависимости от диаметра исследуемого сечения).

Значения твердости в зависимости от степени деформации для образцов, испытанных на растяжение при разных (20–200°С) температурах, а также для образца, испытанного при комнатной температуре, но отожженного затем при 200; 400 и 500°С, приведены на рис. 7. Из полученных данных следует, что незначительное повышение температуры деформации до 100 и 200°С практически полностью нивелирует процесс упрочнения (т.е. зависимость твердости от степени деформации практически отсутствует). В то же время простой нагрев деформированного при комнатной температуре материала до 400–500°С лишь незначительно понижает деформационное упрочнение в сильнодеформированных участках образца.





Рис. 7. Влияние температуры деформации (---) и температуры отжига (—) на микротвердость в шейке образцов, деформированных растяжением: $\blacklozenge - e = 1.3; \bullet - 0.98; \bullet - 0.24$



Рис. 9. Зависимость деформирующего напряжения от степени предварительной деформации при разных уровнях микропластичности: $\times -1.10^{-5}$, $\bullet -1.10^{-4}$, $\bullet -5.10^{-4}$, $\bullet -1.10^{-3}$, $\wp -2.10^{-3}$, $\bullet -5.10^{-3}$

Следовательно, эффект разогрева образца в деформационной оснастке или на стадии приготовления объектов для по-следующего тестирования деформированного материала активизирует процессы релаксации напряжений и деформационной структуры в технически чистом титане. Эффекты релаксации напряжений деформационной и тепловой природы предопределяют закономерности эволюции всех механических свойств деформированного материала.

Важная особенность поведения кривых микродеформации была обнаружена нами [13] при исследовании микротекучести прокатанного молибдена. Оказалось, что на начальной стадии микродеформации кривые микропластичности материалов, подвергнутых широкому диапазону степеней деформации (прокатка от 9 до 75%), практически не чувствительны к величине предварительной деформации, а значит, и к характеру субструктуры (рис. 8, 9). Различия начинают наблюдаться, лишь начиная с деформации



Рис. 8. Кривые микропластичности молибдена, продеформированно-го прокаткой до различ-ных степеней деформации, %: I – исходное состояние, 2 - 9, 3 - 13, 4 - 23, 5 - 39, 6 - 53, 7 - 63, 8 - 68, 9 - 73

0.2%, и достигают достаточно большой и стабильной величины при деформации 0.5%. Этот эффект свидетельствует о сложном характере вовлечения первичной дислокационной структуры, сохранившейся в материале после разгрузки, в процесс повторной деформации.

Таким образом, представленные в данной работе результаты свидетельствуют о важной роли процессов релаксации при упрочнении материалов в области средних и больших деформаций. Особенности протекания этих процессов и их роль в формировании механических свойств следует учитывать при создании адекватной модели упрочнения сильнодеформированных материалов.

Выводы

1. Структурная релаксация, инициированная процессами возврата как во время пластической деформации, так и при разгрузке, приводит к разупрочнению материала, подвергнутого большим степеням деформации.

2. Постулат механики деформирования о том, что деформирующее напряжение, достигаемое в материале при повторном нагружении, совпадает с деформирующим напряжением в момент разгрузки, выполняется только для материалов, не склонных к поперечному скольжению. В противном случае деформирующее напряжение при повторном нагружении существенно ниже, чем при первичном. Такое разупрочнение связано с процессами возврата структуры на стадии разгрузки.

3. На начальных стадиях повторной деформации подвергнутая возврату ячеистая структура взаимодействует с подвижными дислокациями особым образом, так что на уровне микродеформации деформирующее напряжение практически не зависит от степени предшествующей деформации. Только при увеличении микродеформации выше предела текучести наблюдается возрастание деформирующего напряжения с повышением предшествующей деформации.

- 2. R.C. Clenn, G. Langford, A.S. Keh, ASM Trans. Quart. 62, 285 (1969).
- 3. G. Langford M. Cohen, Trans. ASM 62, 623 (1969).
- 4. В.В. Рыбин, Проблемы материаловедения **29**, № 1, 11 (2002).
- 5. J. Bell, Experimental Bases of the Mechanics of Deformed Bodies, Part 1, London (1984).
- 6. В.И. Трефилов, Ю. В. Мильман, С.А Фирстов, Физические основы прочных тугоплавких металлов, Наукова думка, Киев (1975).
- 7. В.И. Трефилов, В.Ф. Моисеев, Э.П. Печковский и др., Деформационное упрочнение и разрушение поликристаллических материалов, В.И. Трефилов (ред.), Наукова

^{1.} A.W. Tompson, Met. Trans. A8, 833 (1977).

думка, Киев (1987).

8. Л.Н. Лариков, Залечивание дефектов в металлах, Наукова думка, Киев (1980).

- 9. *Р.З. Валиев, И. В. Александров*, Нанокристаллические материалы, полученные путем интенсивной пластической деформации, Логос, Москва (2000).
- Y. Beygelzimer, V. Varyukhin, D. Orlov, B. Efros, A. Salimgareyev, V. Stolyarov, in: Proc. of TMS Annual Meeting in Seattle, WA, Feb. 17–21, 2002, p. 43–46.
- 11. Б. Бриджмен, Исследование больших пластических деформаций и разрыва, Издво иностр. лит., Москва (1955).
- 12. Ю.Н. Подрезов, Н.В. Минаков, Электронная микроскопия и прочность материалов, ИПМ, Киев, № 9, 60 (1998).
- 13. Ю.Н. Подрезов, Н.И. Даниленко, Д.Г. Вербило, Электронная микроскопия и прочность материалов, ИПМ, Киев (1996).

S.A. Firstov, Yu.N. Podrezov, N.I. Danilenko, E.M. Borisovskaya, N.V. Minakov

THE ROLE OF RELAXATION PROCESSES IN HARDENING THE NANOCRYSTALLINE MATERIALS PRODUCED BY DEEP PLASTIC DEFORMATION

Features of the course of recovery processes in materials upon hardening in the region of medium and high deformations have been analysed, their role in the formation of structure and properties has been determined. It is shown that regularities in changes of the mechanical properties of materials are determined by stress relaxation effects of deformational and thermal nature.

Fig. 1. Influence of grain size on yield strength of highly deformed armco-iron after ECA-extrusion (O) and drawing (•)

Fig. 2. Dependence of parameter *f* on deformation degree: \bullet – rolling, \triangle – ECA-extrusion, o – drawing [3]

Fig. 3. Hardening curves for deformed iron wire after tensile tests after each cycle of drawing at 20°C [3]

Fig. 4. Hardening curves for Al–Ti–Cr-alloy (*a*) and Al (δ): *1*, *2* – continuous deformation; *3–5* – repeated deformation

Fig. 5. Strain hardening curves for titanium under compression (*a*) with no correction of dimensions (1 – continuous loading; 2, 3 – repeated loading) and that with correction of dimensions (δ) (curve number corresponds to the quantity of loadings)

Fig. 6. Strain hardening curve for titanium under uniaxial tension: ■ – initial curve; • – curve resulted from the account of overtension in the neck

Fig. 7. Influence of the temperature of deformation (---) and annealing (---) on microhardness in the neck for specimens under tensile deformation: $\blacklozenge - e = 1.3$; $\bullet - 0.98$; $\bullet - 0.24$

Fig. 8. Microplasticity curves for molybdenum deformed by rolling to different deformation degrees, %: l - initial state, 2 - 9, 3 - 13, 4 - 23, 5 - 39, 6 - 53, 7 - 63, 8 - 68, 9 - 73**Fig. 9.** Deforming stress as a function of prestraining for different levels of microplasticity: $\times - 1 \cdot 10^{-5}$, $\bullet - 1 \cdot 10^{-4}$, $\bullet - 5 \cdot 10^{-4}$, $\bullet - 1 \cdot 10^{-3}$, $\theta - 2 \cdot 10^{-3}$, $\bullet - 5 \cdot 10^{-3}$