

УДК 669-175.2:539.26

ИССЛЕДОВАНИЕ ДЕФЕКТНОЙ СТРУКТУРЫ НАНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ

И. В. АЛЕКСАНДРОВ

Институт физики перспективных материалов УГАТУ
Тел: (3472) 23 34 22 E-mail: iva@mail.rb.ru

Представлены результаты исследования структуры металлов, подвергнутых интенсивной пластической деформации (ИПД). Особое внимание уделено рентгеновским исследованиям эволюции микроструктуры в чистой Cu в процессе получения массивных наноструктурных образцов ИПД методами кручения под высоким давлением и равноканального углового прессования. Для анализа полученных экспериментальных результатов применено компьютерное моделирование

Интенсивная пластическая деформация; объемные наноструктурные материалы; рентгено-структурный анализ

ВВЕДЕНИЕ

Методы интенсивной пластической деформации (ИПД), под которой понимают большие пластические деформации, осуществленные в условиях высоких приложенных давлений, являются одними из перспективных методов получения наноструктур, для которых характерно проявление привлекательных физических и механических свойств [1]. Важным достоинством методов ИПД по сравнению с другими методами является возможность получения массивных беспористых заготовок, пригодных для тщательной структурной аттестации, исследования различных физических и механических свойств, а также имеющих широкие перспективы практического использования. Однако для установления причин проявления и управления процессом формирования новых свойств необходимо исследовать закономерности, установить соответствующие механизмы и разработать модельные представления об эволюции микроструктуры в ходе ИПД на основе детальной структурной аттестации исследуемых материалов.

К настоящему времени имеется обширный материал, касающийся эволюции микроструктуры в ходе больших деформаций с истинными степенями деформации $\epsilon = 2 \div 5$, достигаемыми прокаткой, экструзией, кручением [2–8]. При этом обнаружено, что при увеличении степени деформации наблюдается фрагментация структуры, растет угол разориентировки между фрагментами, плотность дислокаций в теле фрагментов уменьшается [2, 3]. Развита соответствующая теория и модели [4–8].

В то же время данный вопрос значительно менее исследован в случае интенсивных деформаций, в ходе которых приложенное высокое давление препятствует разрушению и оказывает воздействие на эволюцию микроструктуры образцов, а также способствует достижению больших ($\epsilon \geq$

10) степеней деформации до разрушения. Надежно установлено, что ИПД может привести к формированию наноструктур [9–18], и этот процесс связан с ростом углов разориентировок зерен по мере увеличения степени деформации. При этом приложенные высокие давления и низкие температуры деформации препятствуют протеканию возврата и рекристаллизации в ходе ИПД [10]. Вместе с тем для выявления механизмов формирования наноструктур требуются всесторонние структурные исследования, где наряду с просвечивающей электронной микроскопией (ПЭМ) может быть успешно использован метод рентгено-структурного анализа (РСА).

Показано, что метод РСА занимает особое место и является чрезвычайно информативным при исследовании структуры наноматериалов [13]. Этот метод позволяет получать статистически усредненную информацию о размере областей когерентного рассеяния (ОКР), который может соответствовать размеру зерен в наноматериалах, упругих микроискажениях, параметре решетки, статических и динамических атомных смещениях, преимущественной ориентации зерен и т. д. [14–18].

Целями исследований, результаты которых представлены в настоящей статье, явились установление закономерностей и развитие модельных представлений о формировании наноструктур в ходе ИПД, реализованной с различными схемами, на основе данных новых исследований, выполненных на примере чистой Cu (99,98%).

1. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследуемые образцы подвергали ИПД с использованием основных схем: кручения под высоким приложенным давлением и равноканального углового (РКУ) прессования с различной степенью деформации [1] (рис. 1).

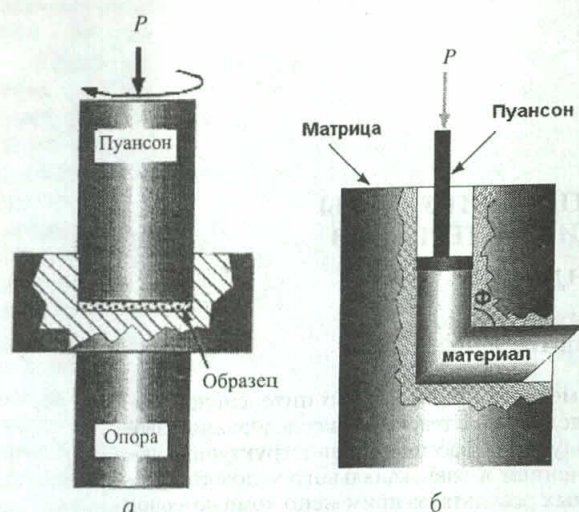


Рис. 1. Схемы ИПД: кручение под высоким давлением (а) и РКУ-прессование (б)

При ИПД кручением образец в форме диска помещался между бойками, сжимался приложенным давлением $P = 5$ ГПа, а затем подвергался сдвиговой деформации в результате поворота нижнего бойка при неподвижном верхнем бойке. Максимальное число поворотов равнялось 6. Полученные образцы имели форму дисков диаметром 10 мм и толщиной $0,3 \div 1$ мм.

В процессе РКУ прессования исходные заготовки неоднократно продавливались в специальной оснастке через два пересекающихся под углом 90° канала с одинаковыми поперечными сечениями. Заготовки имели длину $80 \div 100$ мм и диаметр 20 мм. Максимальное число проходов равнялось 10.

Рентгеноструктурные исследования проводили в температурном интервале $85 \div 295$ К с использованием дифрактометров РИГАКУ Д/МАХ 2400 и ДРОН-4-07 и $\text{Cu K}\alpha$ излучения.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

2.1. ИПД кручением

В ходе проведенных исследований было обнаружено, что общий вид рентгенограмм образ-

цов, подвергнутых ИПД кручением, существенно изменяется по сравнению с крупнокристаллическим (КК) состоянием уже после 2-х оборотов, однако в дальнейшем при увеличении числа оборотов остается практически неизменным. При этом обращает на себя внимание существенное перераспределение интенсивности в пользу рентгеновского пика (111) за счет других пиков. По сравнению с рентгенограммой КК Cu для полученных рентгенограмм Cu , подвергнутой ИПД, характерны уширенные рентгеновские пики с измененными интенсивностями, значительным уширением, смещенными центроидами и длинными хвостами, а также несколько повышенный диффузный фон рассеяния рентгеновских лучей (рис. 2) [14, 16].

Проведенные расчеты показали, что усредненная доля лоренцевой компоненты в функции Фойгта, описывающей профиль рентгеновских пиков и являющейся линейной комбинацией стандартных функций Лоренца (длинные хвосты) и Гаусса (короткие хвосты), постепенно возрастает от 46% в КК состоянии практически до 100% по мере увеличения числа оборотов при кручении под высоким давлением [16].

Обнаруженное уширение рентгеновских пиков связано с уменьшением среднего размера ОКР вплоть до размеров менее 50 нм и увеличением усредненных упругих микроискажений кристаллической решетки вплоть до 0,12%. При этом сам размер и характер эволюции микроструктуры определяются принадлежностью зерен определенной кристаллографической компоненте. Такая же ситуация характерна для упругих микроискажений кристаллической решетки. Так, уровень микроискажений в направлении $\langle 200 \rangle$ более чем в два раза выше, чем в направлении $\langle 111 \rangle$ [14].

Усредненная плотность дислокаций растет по мере увеличения числа оборотов при ИПД кручением и достигает $(2,0 \pm 0,1) \times 10^{14} \text{ м}^{-2}$ при 6 оборотах [16].

Параметр и объем элементарной ячейки кристаллической решетки в образцах Cu , подвергнутых кручению под высоким давлением, оказались меньше, чем в КК Cu . При этом величина отклонения параметра решетки растет по мере увеличения числа оборотов, достигая $(0,019 \pm 0,004)\%$ при 6 оборотах [14].

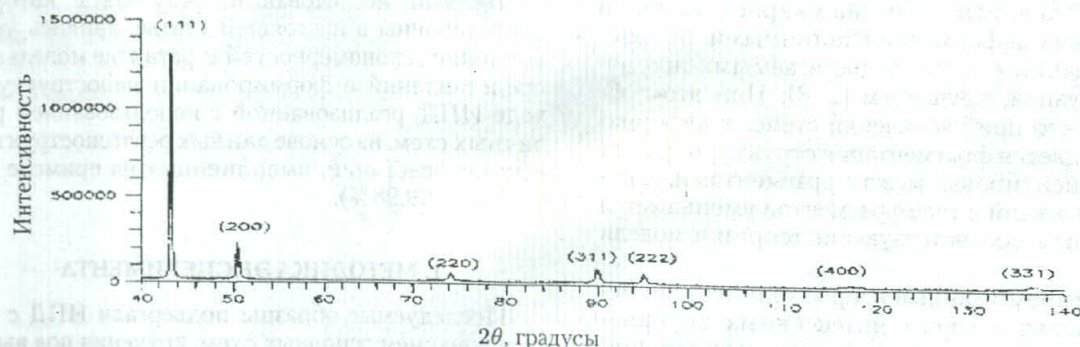


Рис. 2. Типичная рентгенограмма Cu , подвергнутой кручению под высоким давлением ($\epsilon \approx 10$)

Параметр Дебая–Уоллера и величина атомных смещений из узлов кристаллической решетки растут с увеличением числа оборотов (рис. 3). При этом после 6 оборотов атомные смещения достигают $(4,3 \pm 0,2)\%$ от кратчайшего расстояния между атомами при значении $(3,7 \pm 0,2)\%$, характерном для КК Cu [16].

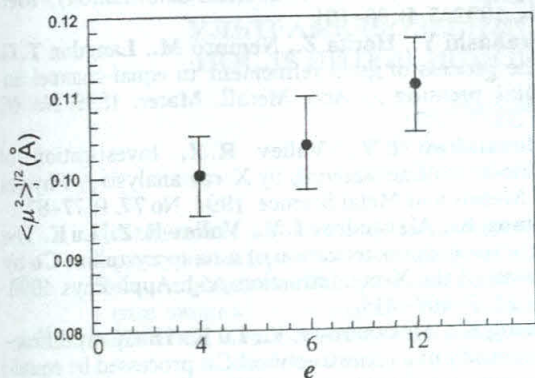


Рис. 3. Зависимость среднеквадратичных атомных смещений $\langle \mu^2 \rangle^{1/2}$ от степени деформации

Интегральная интенсивность фона на рентгенограмме в результате ИПД возрастает на $(6 \pm 3)\%$, что указывает на увеличение концентрации дефектов кристаллического строения в наноструктурной Cu, полученной ИПД [14].

В процессе ИПД кручением в Cu формируется слабая аксиальная текстура. Обратная полюсная фигура (ПФ) нормали к исследуемому образцу, совпадающей с направлением приложенного давления, характеризуется повышенной интенсивностью ориентировок, расположенных между полюсом (111) и полюсом (110) с максимумом вблизи полюса (111) [18].

2.2. РКУ прессование

Процесс формирования наноструктуры в ходе РКУ прессования менее исследован методом РСА, чем в ходе кручения под высоким давлением. Тем не менее, проведенные исследования показали, что рентгенограммы Cu, полученной РКУ прессованием с различным числом проходов (от 1 до 10), существенно отличаются друг от друга относительной интенсивностью рентгеновских пиков.

Уже после 1-го прохода в Cu формируется структура, характеризующаяся средним размером ОКР менее 60 нм и усредненными упругими микроискажениями вплоть до 0,19%. При увеличении числа проходов в ходе РКУ прессования происходит немонотонное изменение размера ОКР и упругих микроискажений. Очевидно, это связано со сложным характером напряженного состояния, изменением ориентации заготовок между очередными проходами через каналы в ходе РКУ прессования.

На неполной ПФ Cu после 10 проходов обнаружено три интенсивных несимметричных текстурных максимума. Обратная ПФ свидетель-

ствует о совпадении нормалей к плоскости (331) с осью деформации. Данный факт согласуется с наблюдением сильного пика (331), обнаруженного на соответствующей рентгенограмме [18].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представленные выше результаты РСА исследований свидетельствуют о том, что при ИПД чистой Cu протекают сложные структурные превращения, общими чертами которых являются существенное уменьшение размеров ОКР, рост упругих микроискажений кристаллической решетки, уменьшение параметра решетки, увеличение параметра Дебая–Уоллера и атомных смещений из узлов равновесной идеальной кристаллической решетки, увеличение интегральной интенсивности диффузного фона рассеяния рентгеновских лучей, развитие кристаллографической текстуры. При этом размер ОКР и величины упругих микроискажений решетки в зернах, принадлежащих различным текстурным компонентам, различны.

Полученные результаты РСА, касающиеся уменьшения размеров структурных единиц и увеличения упругих микроискажений, находятся в соответствии с результатами ПЭМ [9]. С другой стороны, результаты РСА существенно (как качественно, так и количественно) дополняют результаты исследований, проведенных другими методами. Это касается, например, обнаруженных уменьшения параметра решетки, увеличения атомных смещений, развития кристаллографической текстуры и т. д.

Данные РСА исследований развивают структурную модель ИПД наноструктурного состояния, в согласии с которой наноструктура характеризуется не только очень мелкими зёрнами, но и высокими полями упругих дальнедействующих напряжений, создаваемых внесенными зернограничными дислокациями высокой плотности [19].

Использование РСА позволило количественно установить величины атомных смещений, вызванных этими полями напряжений, и оценить усредненную величину упругих напряжений, чего не было сделано ранее. Эти атомные смещения очень существенны и намного превышают соответствующие значения в КК Cu. При этом возрастают не только статические, что говорит о сильно искаженной дефектной структуре, но и динамические атомные смещения, что свидетельствует в пользу изменения тепловых характеристик и фононного спектра в результате ИПД. Анализ экспериментальных данных РСА с помощью компьютерного моделирования рентгенограмм наноструктурных материалов с учетом различных конфигураций внесенных зернограничных дислокаций позволил оценить их плотность, которая может достигать 10^9 м^{-1} [20,21].

Полученные результаты РСА не противоречат и дополняют развитую в [10] схему эволюции микроструктуры в ходе ИПД. Так, с помощью РСА показано, что в ходе ИПД кручением быстро наступает стадия насыщения, вблизи которой структурные параметры изменяются медленно и плав-

но или остаются практически неизменными. Не изменяется и преимущественная ориентация зерен в пространстве. В процессе РКУ прессования имеют место немонокотонные изменения размеров ОКР и упругих микроискажений, а также происходят значительные изменения кристаллографической текстуры после каждого прохода, о чем свидетельствуют резкие изменения интенсивности рентгеновских пиков. Указанные отличия связаны с изменением ориентации заготовки при повторных проходах, что обеспечивает работу иных систем скольжения [22] и приводит к обнаруженным изменениям в характере кристаллографической текстуры в ходе РКУ прессования.

В заключение отметим особое место, которое должны занять исследования формирования кристаллографической текстуры в ИПД металлах. Во-первых, такие исследования помогут глубже понять роль границ зерен в ходе эволюции микроструктуры, установить механизмы ИПД, предсказать спектр зернограницных разориентировок, высказать предположения о возможной анизотропии структурно чувствительных свойств.

ВЫВОДЫ

Проведенные рентгеноструктурные исследования позволили получить новую информацию о характере эволюции микроструктуры в чистой Cu в ходе ИПД, осуществленной различными методами.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ultrafine-grained materials produced by severe plastic deformation / R. Z. Valiev ed. *Annales de Chimie. Science des Materiaux*. 1996. V. 21. P. 369–520.
2. Bykov V. M., Lihachev V. A., Nikonov Yu. A. et al. Fragmentation and dynamic recrystallization in copper at large and very large plastic deformations // *Physics of Metals and Metal Science*. 1978. No 45. P. 163–169.
3. Gindin I. A., Starodubov Ya. D., Aksenov V. K. Structure and strength properties of metals with extremely distorted crystal lattice // *Metalphysics*. 1980. No 2. P. 49–67.
4. Рыбин В. В. Большие пластические деформации и разрушение металлов. М.: Металлургия, 1986. 223 с.
5. Zehetbauer M., Seumer V. Cold work hardening in stages IV and V of F.C.C. metals – I. Experiments and interpretation // *Acta Metall. Mater*. 1993. No 41. P. 577–588.
6. Zehetbauer M. Cold work hardening in stages IV and V of F.C.C. metals – II. Models fits and physical results // *Acta Metall. Mater*. 1993. No 41. P. 589–599.
7. Ungar T., Zehetbauer M. Stage IV work hardening in cell forming materials. Part II: A new mechanism // *Acta Metall. Mater*. 1996. No 35. P. 1467–1473.
8. Estrin Y., Toth L. S., Molinari A., Brechet Y. A dislocation-based model for all hardening stages in large strain deformation // *Acta Mater*. 1998. No 46. P. 5509–5522.
9. Smirnova N. A., Levit V. I., Pilyugin V. I. et al. Structural evolution of F.C.C. single crystals at large plastic deformations // *Physics of Metals and Metal Science*. 1986. № 61. P. 1170–1177.
10. Valiev R. Z., Ivanisenko Yu. V., Rauch E. F., Baudalet B. Structure and deformation behaviour of ARMCO iron subjected to severe plastic deformation // *Acta Mater*. 1996. No 44. P. 4705–4712.
11. Akhmadeev N. A., Valiev R. Z., Kopylov V. I., Mu-lyukov R. R. Development of subgranular structure in copper and nickel at intense shear deformation // *Metals*. 1992. 5. P. 96–101.
12. Iwahashi Y., Horita Z., Nemoto M., Langdon T. G. The process of grain refinement in equal-channel angular pressing // *Acta Metall. Mater*. 1998. No 46. P. 3317–3331.
13. Alexandrov I. V., Valiev R. Z. Investigation of nanocrystalline materials by X-ray analysis // *Physics of Metals and Metal Science*. 1994. No 77. P. 77–87.
14. Zhang K., Alexandrov I. V., Valiev R. Z., Lu K. The structural characterization of a nanocrystalline Cu by means of the X-ray diffraction // *J. Appl. Phys*. 1996. No 21. P. 407–416.
15. Zhang K., Alexandrov I. V., Lu K. The X-ray diffraction study of a nanostructured Cu processed by equal-channel angular pressing // *NanoStructured Materials*. 1997. No 9. P. 347–350.
16. Zhang K., Alexandrov I. V., Kilmametov A. R. et al. The crystallite-size dependence of structural parameters in pure ultrafine-grained copper // *J. Phys. D: Appl. Phys*. 1997. No 30. P. 3008–3015.
17. Zhang K., Alexandrov I. V., Valiev R. Z., Lu K. The thermal behavior of atoms in ultrafine-grained Ni processed by severe plastic deformation // *J. Appl. Phys*. 1998. No 84. P. 1924–1927.
18. Alexandrov I. V., Wang Y. D., Zhang K. et al. X-ray analysis of the textured nanocrystalline materials // *Proc. of the 11th Int. Conf. on Textures in Materials (ICOTOM-11)*. China, 1996. P. 929–940.
19. Valiev R. Z. Approach to nanostructured solids through the studies of submicron grained polycrystals // *NanoStructured Materials*. 1995. No 6. P. 73–82.
20. Alexandrov I. V., Valiev R. Z. Computer simulation of X-ray diffraction patterns of nanocrystalline materials // *Philos. Magaz*. 1996. No B 73. P. 861–872.
21. Alexandrov I. V., Enikeev N. A., Valiev R. Z. Investigation of assemblies of grain boundary dislocations in nanostructured copper by computer simulation // *Mater. Sci. Forum No 294–296*. 1999. P. 207–210.
22. Gibbs M. A., Hartwig K. T., Cornell L. R. et al. Texture formation in bulk iron processed by simple shear // *Scr. Mater*. 1998. No 39. 1699–1704.

ОБ АВТОРЕ



Александр Игорь Васильевич, вед. науч. сотр. ИФПМ, профессор кафедры безопасности жизнедеятельности и промышленной экологии УГАТУ. Дипл. физик (БГУ, 1976). Д-р физ.-мат. наук по физике твердого тела (защ. в Ин-те физики металлов УрНЦ РАН, 1997). Исследования в области физики прочности и пластичности материалов.