

ФИЗИКА ПРОЧНОСТИ И ПЛАСТИЧНОСТИ

PACS numbers: 61.05.cp, 61.72.Mm, 62.20.de, 62.40.+i, 81.20.Ny, 81.40.Ef, 81.40.Jj

О природе аномального поведения динамического модуля упругости субмикрорекристаллической меди при отжиге

В. А. Белошенко, А. А. Давиденко, В. Ю. Дмитренко,
А. Н. Пилипенко, Н. Е. Письменова, В. В. Чижко

*Донецкий физико-технический институт им. А. А. Галкина НАН Украины,
просп. Науки, 46,
03680, ГСП, Киев, Украина*

Исследованы температурные зависимости динамического модуля сдвига, внутреннего трения и эволюция структуры субмикрорекристаллической меди марки FRTP при нагреве. Установлено, что аномальный (до 50%) рост модуля сдвига меди с повышением температуры термообработки обусловлен возникновением двойников отжига.

Ключевые слова: медь, модуль сдвига, текстура, двойники отжига.

Досліджено температурні залежності динамічного модуля зсуву, внутрішнього тертя та еволюцію структури субмікрорекристалічної міді марки FRTP при нагріві. Встановлено, що аномальне (до 50%) зростання модуля зсуву міді з підвищенням температури термооброблення зумовлено виникненням двійників відпалу.

Ключові слова: мідь, модуль зсуву, текстура, двійники відпалу.

The temperature dependences of dynamic shear modulus and internal friction as well as the structural evolution under heating of submicrocrystalline copper of the FRTP grade are investigated. As found, the anomalous increase (up to 50%) in the shear modulus of copper with increasing of the heat-

Corresponding author: Vyacheslav Valerievich Chishko
E-mail: chishko@ukr.net

*Donetsk Institute for Physics and Engineering Named After O. O. Galkin, N.A.S. of
Ukraine, 46 Nauky Ave., UA-03680 Kyiv, Ukraine*

Please cite this article as: V. A. Beloshenko, A. A. Davidenko, V. Yu. Dmitrenko, A. N. Pilipenko, N. E. Pismenova, and V. V. Chishko, On the Nature of the Anomalous Behaviour of a Dynamic Modulus of Elasticity of Submicrocrystalline Copper at Annealing, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **38**, No. 3: 405–414 (2016) (in Russian), DOI: 10.15407/mfint.38.03.0405.

treatment temperature is due to the appearance of the annealing twins.

Key words: copper, shear modulus, texture, annealing twins.

(Получено 22 декабря 2015 г.; окончат. вариант — 26 января 2016 г.)

1. ВВЕДЕНИЕ

Материалы с ультрамелкозернистой (субмикро- и нанокристаллической) структурой представляют особый интерес из-за их уникального комплекса механических и физических свойств. В то же время особенности таких структур (малый размер зёрен, наличие многочисленных поверхностей раздела, внутренних напряжений и др.) определяют неравновесное состояние материала, релаксация которого при последующей деформационно-термической обработке приводит к значительному изменению характеристик, в том числе упругих. Для мелкозернистой меди обнаружен ряд аномалий в поведении динамических модулей упругости: значительное (до 15%) снижение их величины при деформации методом равноканального углового прессования (РКУП) [1–3]; кардинальное отличие поведения модулей после обработки РКУП или гидроэкструзией с волочением [4]; повышение (до 25%) модуля сдвига с ростом температуры отжига [5–7]. Несмотря на большое количество исследований, посвящённых данному вопросу (см. ссылки в работах [1–7]), природа указанных аномалий однозначно не установлена. Возможные механизмы изменения модулей упругости в меди связываются с внутренними напряжениями, дефектной структурой, упругими модулями границ зёрен, текстурой материала [1–5, 8, 9]. Авторами работы [6] предложена теоретическая модель, связывающая аномальное поведение температурной зависимости модуля сдвига в субмикроркристаллической меди с возникновением двойников отжига. Цель настоящей работы — экспериментальная проверка физической модели [6].

2. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

В качестве объекта исследования использовали медь марки FRTP (чистота — 99,95%), деформированную при комнатной температуре методом гидроэкструзии с последующим волочением (степень суммарной деформации $e = 6,8$).

Измерения динамического модуля сдвига G и внутреннего трения (ВТ) осуществляли с помощью автоматизированной системы релаксационной спектроскопии [10]. О поведении динамического модуля сдвига судили по изменению частоты колебаний f , поскольку $G \sim f^2$. Исследуемые образцы имели диаметр 2,0 мм и длину рабо-

чей части 90 мм. Амплитуда колебаний соответствовала амплитудонезависимой области и составляла 10^{-5} , частота — 60 Гц, скорость изменения температуры — 2 град/мин. Термообработку исследуемых образцов (нагрев до заданной температуры со скоростью 2 град/мин с последующим охлаждением до комнатной) проводили в вакууме непосредственно в установке.

Структуру деформированных и отожжённых образцов меди FRTP (диаметром 5,0 мм) изучали методом оптической микроскопии (ZEISS Axiovert 40 MAT). Отжиг образцов для структурных исследований осуществляли в вакуумной печи со скоростью нагрева 2 град/мин при давлении 10^{-5} мм рт. ст.

Рентгеноструктурные исследования проводили на дифрактометре ДРОН-3.0 в $\text{CuK}\alpha$ -излучении на том же образце, что и измерения модуля сдвига. Размеры областей когерентного рассеяния (ОКР) $D_{\text{ОКР}}$ определяли по линии (111) с использованием формулы Селякова–Шеррера.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рисунке 1 представлены температурные зависимости динамического модуля сдвига исследованных образцов меди. Деформиро-

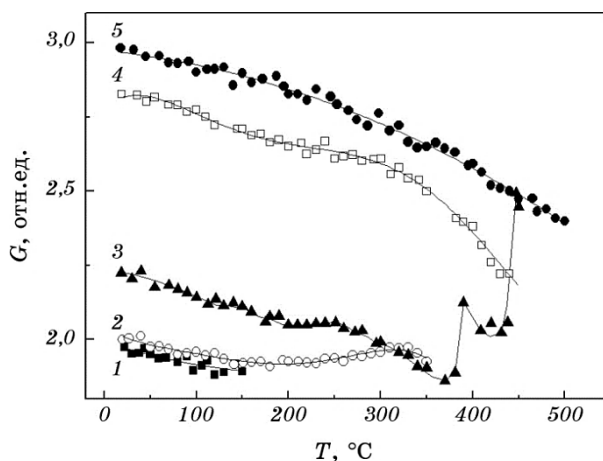


Рис. 1. Температурные зависимости динамического модуля сдвига Cu-FRTP: 1 — деформированный образец, 2 — после нагрева до 150°C, 3 — после нагрева до 350°C, 4 — после нагрева до 450°C, 5 — после отжига при 800°C, 3 часа.

Fig. 1. Temperature dependences of dynamic shear modulus of Cu-FRTP: 1— deformed sample, 2—after heating to 150°C, 3—after heating to 350°C, 4— after heating to 450°C, 5—after annealing at 800°C, 3 hours.

ванная медь обнаруживает монотонное уменьшение G с ростом температуры в интервале 20–150°C (кривая 1). Нагрев деформированного образца до температуры 150°C незначительно повышает величину G (кривая 2). Увеличение температуры нагрева до 350°C приводит к существенным изменениям динамического модуля сдвига. При комнатной температуре модуль возрастает более чем на 10% по сравнению с предыдущим значением, а при $T = 380^\circ\text{C}$ начинается его аномальное увеличение (кривая 3). Оно соответствует рекристаллизационному пику на температурной зависимости ВТ (рис. 2) [11]. После нагрева до 450°C, а также отжига при 800°C величина G в сравнении с деформированным образцом возрастает на 43% и 51% соответственно (рис. 1, кривые 4 и 5).

Поведение температурных зависимостей ВТ исследуемых образцов полностью согласуется с таковым у зависимостей $G(T)$: с увеличением температуры предварительного нагрева величина ВТ монотонно снижается, после нагрева до 450°C пик, обусловленный рекристаллизацией, не регистрируется (рис. 2). Отсутствие рекристаллизационного и зернограничного пиков Cu после нагрева до 450°C может быть вызвано превращением при термической обработке легкоподвижных и метастабильных межзёренных границ в устойчивые и малоподвижные, на которых релаксация напряжений реализуется при значительно более высоких температурах [12].

Одним из факторов, определяющих величину G , является кон-

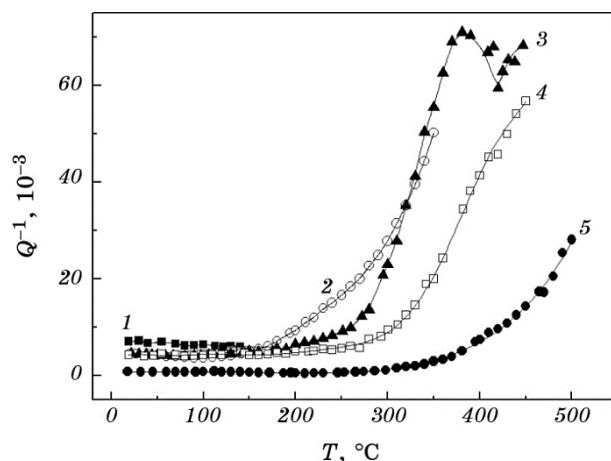


Рис. 2. Температурные зависимости внутреннего трения Cu-FRTP: 1 — деформированный образец, 2 — после нагрева до 150°C, 3 — после нагрева до 350°C, 4 — после нагрева до 450°C, 5 — после отжига при 800°C, 3 часа.

Fig. 2. Temperature dependences of internal friction of Cu-FRTP: 1— deformed sample, 2—after heating to 150°C, 3—after heating to 350°C, 4— after heating to 450°C, 5—after annealing at 800°C, 3 hours.

центрация и характер расположения (в теле зерна, на границах, в скоплениях) дислокаций. Поскольку медь характеризуется низкой энергией дефектов упаковки [13], процессы переползания и поперечного скольжения дислокаций в ней затруднены [14]. Это означает, что интенсивного перераспределения дислокаций в их скоплениях не происходит вплоть до температур рекристаллизации [15]. Вероятно, этим можно объяснить малые изменения величины G при нагреве до 150°C .

Теоретическая оценка изменения модуля сдвига меди в рамках традиционных моделей, оперирующих внутренними напряжениями, решёточными дислокациями и упругими модулями границ зёрен, с использованием данных рентгеноструктурного анализа даёт более чем на порядок отличающиеся значения G в сравнении с экспериментом [7]. Таким образом, можно утверждать, что указанные факторы не являются определяющими в наблюдаемых изменениях динамического модуля сдвига. Аналогичные выводы сделаны в работе [9].

Авторами [4] высказано предположение, что аномальное поведение динамического модуля меди обусловлено развитием в процессе деформации текстуры волочения (111), которая после термообработки образцов сменяется текстурой отжига (001). Результаты рентгеноструктурного анализа исследуемой меди марки FRTP приведены на рис. 3. Дифракционная картина деформированного образца (рис. 3, а) демонстрирует наличие сильной кристаллографической ориентации, характерной для проволок, полученных волочением — отсутствуют рефлексы (220), (311) и (400), слабо выражен рефлекс (200), велика интенсивность линии (111). Соотношение интенсивностей пиков (111) и (200) составляет $I_{(111)}/I_{(200)} = 4,4$.

После нагрева до 150°C и 350°C дифракционная картина качественно не меняется (рис. 3, б, в). При этом $I_{(111)}/I_{(200)}$ составляют 8,9 и 6,5 соответственно, что свидетельствует о текстурных изменениях в материале. С повышением температуры нагрева до 450°C на рентгенограмме (рис. 3, г) появляются рефлексы (311) и (400), значительно увеличивается интенсивность рефлекса (200) ($I_{(111)}/I_{(200)} = 0,8$). Повторный нагрев до 450°C понижает соотношение интенсивностей пиков $I_{(111)}/I_{(200)}$ до 0,64 (рис. 3, д). После отжига при 800°C (рис. 3, е) существенно повышается интенсивность рефлекса (111). При этом $I_{(111)}/I_{(200)} = 2$, что близко к значению соотношения интенсивностей указанных пиков в нетекстурированной меди ($I_{(111)}/I_{(200)} = 2,2$ [16]). Таким образом, с учётом монотонного повышения динамического модуля сдвига меди с ростом температуры предварительного нагрева (рис. 1) можно считать, что влияние изменений текстуры не является определяющим.

Диссипация механической энергии в однофазных немагнитных материалах в основном определяется дефектами структуры. Поэто-

му можно предположить, что при термической обработке такие изменения в структуре меди, как появление двойников отжига, окажут определённое влияние на упругие модули [17].

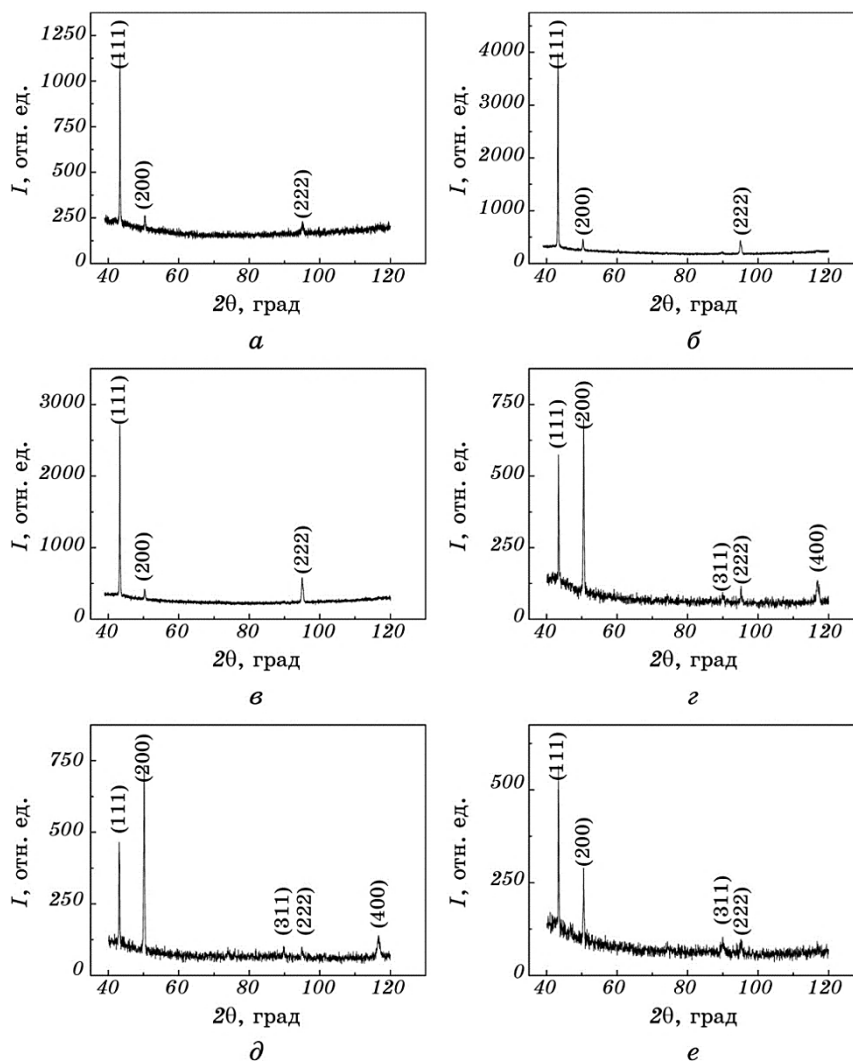


Рис. 3. Рентгеновские дифракционные картины для Cu-FRTP: *a* — деформированное состояние, *б* — после нагрева до 150°C, *в* — после нагрева до 350°C, *г* — после нагрева до 450°C, *д* — после повторного нагрева до 450°C, *е* — после отжига при 800°C.

Fig. 3. The X-ray diffraction patterns for Cu-FRTP: *a*—deformed sample, *б*—after heating to 150°C, *в*—after heating to 350°C, *г*—after heating to 450°C, *д*—after reheating to 450°C, *е*—after annealing at 800°C.

Исследования деформированных образцов диаметром 5 мм методом оптической микроскопии показали, что в них формируется типичная для деформированного состояния неравновесная структура. Её можно условно охарактеризовать как состоящую из трёх групп зёрен (рис. 4, *а*). Основную часть составляют зёрна размером 3–5 мкм, присутствует небольшое количество мелких равноосных зёрен (1–2 мкм) и крупных зёрен размером 4–8 мкм.

После нагрева до температуры 350°C в результате протекания рекристаллизационных процессов формируется более однородная структура, зёрна принимают в основном правильную равноосную форму и имеют размер 2–4 мкм (рис. 4, *б*). Появляется небольшое количество двойников отжига (0,65 ед./мм²). Повышение температуры нагрева до 450°C приводит к формированию в основном крупнозернистой (10–30 мкм) структуры с малым числом мелких (1–2

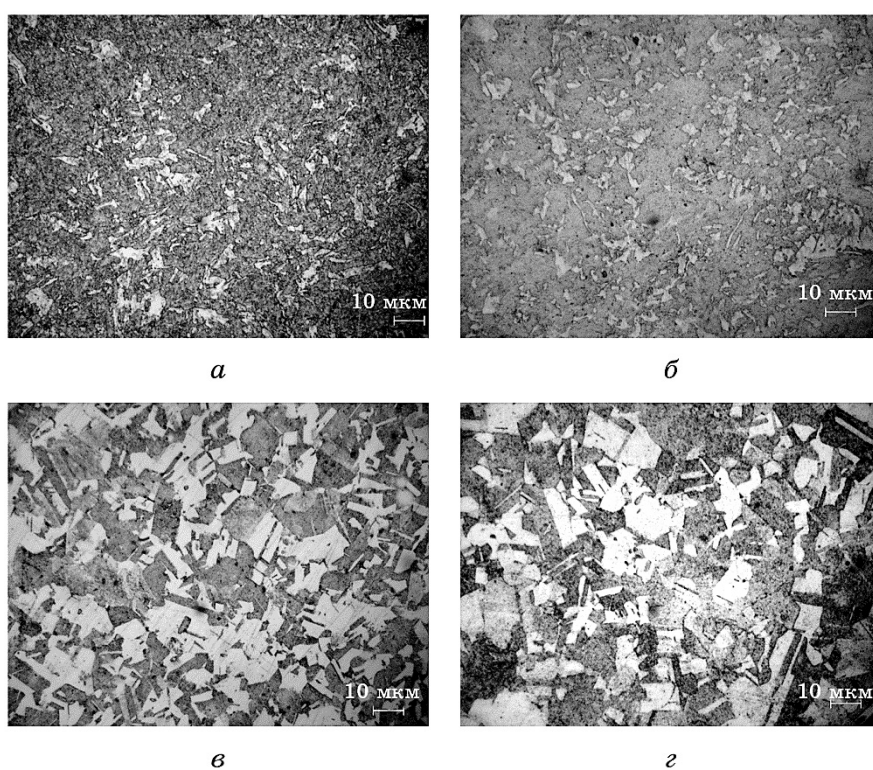


Рис. 4. Структура Cu-FRTP (поперечное сечение): *а* — деформированное состояние, *б* — после нагрева до 350°C, *в* — после нагрева до 450°C, *г* — после повторного нагрева до 450°C.

Fig. 4. Structure of Cu-FRTP (cross-section): *a*—deformed state, *б*—after heating to 350°C, *в*—after heating to 450°C, *г*—after reheating to 450°C.

мкм) равноосных зёрен и увеличению количества двойников отжига до 3,2 ед./мм² (рис. 4, в). Повторный нагрев до 450°C не изменяет количество двойников (рис. 4, з). При этом растёт их толщина, что приводит к увеличению объёмной плотности двойников отжига.

Эти факты не противоречат изменениям размеров ОКР. В деформированном и нагревавшемся до 350°C образцах $D_{\text{ОКР}} = 44,6$ нм. После нагрева до 450°C размер ОКР составляет 49,6 нм. Повторный нагрев до 450°C снижает $D_{\text{ОКР}}$ до 37,2 нм. Как известно, с ростом температуры нагрева меди вследствие аннигиляции дислокаций их плотность снижается, что должно приводить к увеличению размеров ОКР. Наблюдаемое уменьшение $D_{\text{ОКР}}$ при повторном нагреве до 450°C может быть объяснено увеличением плотности двойников отжига. Указанные изменения размеров ОКР коррелируют с ростом модуля сдвига меди при увеличении температуры термообработки (рис. 1).

Таким образом, в отличие от существующих представлений [1–5, 8, 9] о роли внутренних напряжений, решёточных дислокаций, упругих модулей границ зёрен и текстуры материала, основной вклад в аномальный рост динамического модуля сдвига меди с повышением температуры отжига вносят образующиеся двойники отжига, что согласуется с физической моделью, предложенной в работе [6].

4. ВЫВОДЫ

Установлено, что аномальное увеличение динамического модуля сдвига (до 50%) субмикроструктурной меди марки FRTP, наблюдаемое с повышением температуры термообработки, обусловлено возникновением двойников отжига и ростом их плотности.

Авторы выражают благодарность к.т.н. Л. Ф. Сенниковой за помощь в проведении металлографических исследований.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. N. A. Akhmadeev, N. P. Kobelev, R. R. Mulyukov, Y. M. Soifer, and R. Z. Valiev, *Acta Metall. Mater.*, **41**:1041 (1993).
2. A. B. Lebedev, Y. A. Burenkov, A. E. Romanov, V. I. Kopylov, V. P. Filonenko, and V. G. Gryaznov, *Mater. Sci. Eng. A*, **203**: 165 (1995).
3. A. B. Lebedev, Y. A. Burenkov, V. I. Kopylov, A. E. Romanov, and V. G. Gryaznov, *Philos. Mag. Lett.*, **23**: 241 (1996).
4. P. P. Pal-Val, Yu. N. Loginov, S. L. Demakov, A. G. Illarionov, V. D. Natsik, L. N. Pal-Val, A. A. Davydenko, and A. P. Rybalko, *Mater. Sci. Eng. A*, **618**: 9 (2014).
5. N. Kobelev, E. Kolyvanov, and Y. Estrin, *Acta Mater.*, **56**: 1473 (2008).

6. Н. В. Токий, В. В. Токий, А. Н. Пилипенко, Н. Е. Письменова, *ФТТ*, **56**, № 5: 966 (2014).
7. Н. В. Токий, А. Н. Пилипенко, В. В. Токий, *Металлофиз. новейшие технол.*, **36**, № 8: 1129 (2014).
8. П. П. Паль-Валь, Л. Н. Паль-Валь, *Металловедение и термическая обработка металлов*, **5**: 683 (2012).
9. Н. А. Ахмадеев, Р. З. Валиев, Н. П. Кобелев, Р. Р. Мулюков, Я. М. Сойфер, *ФТТ*, **34**, № 10: 3155 (1992).
10. А. Н. Пилипенко, *Физика и техника высоких давлений*, **23**: 135 (2013).
11. В. А. Белошенко, В. Ю. Дмитренко, А. Н. Пилипенко, В. В. Чишко, *Металлофиз. новейшие технол.*, **37**, № 11: 1539 (2015).
12. О. И. Волчок, В. С. Оковит, Л. А. Чиркина, М. А. Тихоновский, В. В. Калининский, А. А. Куприянов, И. В. Колодий, *Вісник ХНУ. Серія Фізика*, **11**, № 821: 97 (2008).
13. Я. Д. Вишняков, *Дефекты упаковки в кристаллической структуре* (Москва: Металлургия: 1970).
14. И. И. Новиков, *Теория термической обработки металлов* (Москва: Металлургия: 1978).
15. А. М. Сулима, *Качество поверхностного слоя и усталостная прочность деталей из жаропрочных и титановых сплавов* (Москва: Машиностроение: 1974).
16. J. Chen, L. Lu, and K. Lu, *Scr. Mater.*, **54**: 1913 (2006).
17. A. I. Ustinov, V. S. Skorodzievski, and E. V. Fesiun, *Acta Mater.*, **56**: 3770 (2008).

REFERENCES

1. N. A. Akhmadeev, N. P. Kobelev, R. R. Mulyukov, Y. M. Soifer, and R. Z. Valiev, *Acta Metall. Mater.*, **41**:1041 (1993).
2. A. B. Lebedev, Y. A. Burenkov, A. E. Romanov, V. I. Kopylov, V. P. Filonenko, and V. G. Gryaznov, *Mater. Sci. Eng. A*, **203**: 165 (1995).
3. A. B. Lebedev, Y. A. Burenkov, V. I. Kopylov, A. E. Romanov, and V. G. Gryaznov, *Philos. Mag. Lett.*, **23**: 241 (1996).
4. P. P. Pal-Val, Yu. N. Loginov, S. L. Demakov, A. G. Illarionov, V. D. Natsik, L. N. Pal-Val, A. A. Davydenko, and A. P. Rybalko, *Mater. Sci. Eng. A*, **618**: 9 (2014).
5. N. Kobelev, E. Kolyvanov, and Y. Estrin, *Acta Mater.*, **56**: 1473 (2008).
6. N. V. Tokiy, V. V. Tokiy, A. N. Pilipenko, and N. E. Pismenova, *Fiz. Tverd. Tela*, **56**, No. 5: 966 (2014) (in Russian).
7. N. V. Tokiy, A. N. Pylypenko, and V. V. Tokiy, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **36**, No. 8: 1129 (2014) (in Russian).
8. P. P. Pal-Val and L. N. Pal-Val, *Metallovedenie i Termicheskaya Obrabotka Metallov*, **5**: 683 (2012) (in Russian).
9. N. A. Ahmadeev, R. Z. Valiev, N. P. Kobelev, R. R. Mulyukov, and Ya. M. Soyfer, *Fiz. Tverd. Tela*, **34**, No. 10: 3155 (1992) (in Russian).
10. A. N. Pilipenko, *Fizika i Tekhnika Vysokikh Davleniy*, **23**, No. 4: 135 (2013) (in Russian).
11. V. O. Beloshenko, V. Yu. Dmitренко, A. M. Pylypenko, and V. V. Chishko,

- Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **37**, No. 11: 1539 (2015) (in Russian).
12. O. I. Volchok, V. S. Okovit, L. A. Chirkina, M. A. Tikhonovskiy, V. V. Kalinovskiy, A. A. Kupriyanov, and I. V. Kolodiy, *Visnik KhNU. Seriya Fizika*, **11**, No. 821: 97 (2008) (in Russian).
 13. Ya. D. Vishnyakov, *Defekty Upakovki v Kristallicheskoj Strukture* (Moscow: Metallurgiya: 1970) (in Russian).
 14. I. I. Novikov, *Teoriya Termicheskoy Obrabotki Metallov* (Moscow: Metallurgiya: 1978) (in Russian).
 15. A. M. Sulima, *Kachestvo Poverkhnostnogo Sloya i Ustalostnaya Prochnost' Detaley iz Zharoprochnykh i Titanovykh Splavov* (Moscow: Mashinostroenie: 1974) (in Russian).
 16. J. Chen, L. Lu, and K. Lu, *Scr. Mater.*, **54**: 1913 (2006).
 17. A. I. Ustinov, V. S. Skorodzievski, and E. V. Fesiun, *Acta Mater.*, **56**: 3770 (2008).