

# Релаксация напряжения в ультрамелкозернистой меди при низких гомологических температурах

Н.В. Исаев, Т.В. Григорова

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины  
пр. Науки, 47, г. Харьков, 61103, Украина*

E-mail: isaev@ilt.kharkov.ua

А.А. Давиденко

*Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины  
пр. Науки, 46, г. Киев, 03028, Украина*

С.С. Полищук

*Институт металлофизики им. Г.В. Курдюмова НАН Украины  
бульвар Академика Вернадского, 36, г. Киев, 03680, Украина*

Статья поступила в редакцию 23 мая 2018 г., опубликована онлайн 26 сентября 2018 г.

Изучена температурная и скоростная чувствительность напряжения течения ультрамелкозернистой (УМЗ) меди, приготовленной методом равноканальной угловой гидроэкструзии. Эксперименты по растяжению и релаксации напряжения проводились в интервале температур 77–295 К. Установлено, что с увеличением температуры напряжение течения монотонно уменьшается, а активационный объем достигает максимума  $\sim 190b^3$  при температуре  $\sim (200 \pm 20)$  К. Для обсуждения результатов эксперимента привлекаются два механизма термически активированной пластической деформации: пересечение дислокаций «леса» и динамический возврат, способный существенно исказить кинетику релаксации приложенного напряжения в УМЗ меди.

Ключевые слова: ультрамелкозернистый металл, механические свойства, механизм деформации, активационный объем.

## 1. Введение

Скорость пластической деформации кристаллических материалов при низких гомологических температурах связана с термически активированным движением дислокаций под действием сдвигового напряжения, которое можно представить в виде [1]

$$\tau = \tau_i + \tau^*, \quad (1)$$

где  $\tau^*$  — эффективное напряжение, зависящее от температуры  $T$  и скорости деформации  $\dot{\epsilon}$ , т.е. определяемое короткодействующими препятствиями, которые дислокация способна преодолеть с помощью термических флуктуаций,  $\tau_i$  — внутреннее напряжение, связанное с дальнедействующими препятствиями и зависящее от

температуры в меру слабой зависимости упругих постоянных кристалла. Скорость пластической деформации описывается соотношением [2]

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 \exp \left\{ -\frac{H(\tau^*)}{kT} \right\}, \quad (2)$$

где  $\dot{\epsilon}_0$  — зависит от частоты попыток преодоления барьера и не зависит от напряжения и температуры,  $H$  — эффективная энергия (энтальпия) активации,  $k$  — константа Больцмана. При наличии в кристалле однопредельных короткодействующих препятствий зависимость  $H(\tau^*)$  в (2) аппроксимируется выражением [2]

$$H(\tau^*) = H_0 \left[ 1 - \left( \frac{\tau^*}{\tau_c} \right)^p \right]^q, \quad (3)$$

где  $H_0$  — энтальпия активации при  $\tau^* = 0$ ;  $\tau_c$  — пороговое напряжение при  $T = 0$  К, численные параметры  $1 \leq q \leq 2$  и  $0 \leq p \leq 1$  определяются формой потенциальных барьеров и статистикой их распределения вдоль дислокации.

В чистых ГЦК кристаллах с размером зерна  $d > 1$  мкм (КЗ), таких как медь, при температурах  $T/T_m < 0,3$  ( $T_m$  — температура плавления) скорость деформации определяется пересечением дислокаций леса, для которых часто принимают  $q \approx 1$  (прямоугольный барьер). Тогда из соотношений (1)–(3) следует

$$\tau^*(T) = \tau_c \left[ 1 - \frac{T}{T_0} \right]^{1/p}, \quad (4)$$

$$\left( \frac{\Delta \tau^*}{\Delta \ln \dot{\epsilon}} \right)_T = \tau_c (pA)^{-1} \left( \frac{T}{T_0} \right) \left[ 1 - \frac{T}{T_0} \right]^{(1-p)/p}, \quad (5)$$

где  $A = \ln \left( \frac{\dot{\epsilon}_0}{\dot{\epsilon}} \right)$ ,  $T_0 = \frac{H_0}{kA}$ , а соотношение (5) определяет эффективный (истинный) активационный объем процесса пересечения дислокаций леса:

$$V(T) = - \left( \frac{\partial H}{\partial \tau^*} \right)_T = \frac{pH_0}{\tau_c \left( 1 - \frac{T}{T_0} \right)^{1-1/p}}. \quad (6)$$

В экспериментах скоростная чувствительность напряжения  $\frac{d\sigma}{d \ln \dot{\epsilon}}$ , где  $\sigma = M_T \tau$ ,  $M_T$  — ориентационный фактор Тейлора, чаще всего определяется методами циклирования скорости деформации и релаксации напряжения, а рассчитанный по ней активационный объем  $V_a = M_T kT \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \sigma}$  в обычных поликристаллах составляет  $\sim 10^2 - 10^4 b^3$  ( $b$  — длина вектора Бюргера дислокации) [3,4]. Как следует из (1), (4), (6) величина  $V_a$  в этом случае растет с увеличением температуры (уменьшением приложенного напряжения).

В ультрамелкозернистых (УМЗ) поликристаллах ( $d < 1$  мкм), приготовленных различными методами интенсивной пластической деформации (ИПД), эта пропорция нарушается, а величина  $V_a$  составляет  $\sim 1 - 10^2 b^3$  [4,5]. Изменение вида зависимости  $V_a(T)$  рассматривается как признак другого термофлуктуационного механизма, связанного с возрастанием роли границ зерен при пластической деформации УМЗ материалов.

В [4,6] предполагается, что скорость пластической деформации контролируется смещением атомов в границе зерна под действием высоких внутренних напряжений в голове скопления дислокаций у границы. Эта модель объясняет экспериментальные значения  $V_a \sim \sim 100b^3$  и  $50b^3$  при температурах 77 и 300 К соответственно, полученные для электроосажденной и осажденной из паровой фазы меди ( $d \sim 0,5 - 0,6$  мкм), которые

не объясняются соотношениям (1)–(6). Однако предсказанная моделью истинная величина  $V^* \sim 1 - 10b^3$  представляется слишком малой и наблюдалась только в пленках меди, полученных магнетронным распылением ( $d \sim 10$  нм) [7], где образование скоплений дислокаций маловероятно.

В [8] предложен механизм термофлуктуационного открепления сегмента дислокации от короткодействующих препятствий, статистически распределенных в границе зерна с размерами  $\sim 30 - 500$  нм. В этом случае эффективный активационный объем  $V^*$  определяется смещением центра кривизны сегмента при его откреплении от препятствия и движении вдоль границы. Вследствие зависимости критической кривизны сегмента дислокации от силы линейного натяжения и приложенного напряжения величина  $V^*$  тем меньше, чем меньше  $d$  и выше  $T$ . Этим механизмом объяснялась обратная зависимости  $V_a$  от  $T$  при  $T \geq 200$  К в аккумулятивно прокатанной меди ( $d \sim 370$  нм) с высоким содержанием большеугловых границ [9], а также в Cu, полученной методом равноканального углового прессования ( $d \sim 280$  нм) [10], где оптимальное согласие с экспериментом достигалось при значении  $H_0 \sim 2$  эВ в соотношении (3). Обратная зависимость  $V_a(T)$  также наблюдалась при  $T \geq 200$  К в УМЗ Cu-OF ( $d \sim 500$  нм) [11], где для ее объяснения, помимо механизма [8], привлекался механизм поперечного скольжения дислокаций в меди при малых напряжениях, предложенный в [3].

Экспериментальные оценки скоростной чувствительности напряжения течения и расчет активационного объема недавно обсуждались в [12]. Отмечено, что результаты, полученные для близких по структуре УМЗ материалов, существенно зависят от способа измерения напряжения, что объясняется неконтролируемыми изменениями микроструктуры в ходе эксперимента, связанными с возвратом. При циклировании скорости деформации выполнение условия постоянной микроструктуры в УМЗ материалах ограничено их низкой пластичностью: высокая плотность границ зерен и дислокаций препятствует дальнейшему упрочнению и стимулирует динамический возврат даже при низких гомологических температурах  $T/T_m < 0,3$ . В результате образец быстро теряет устойчивость при растяжении (образуется шейка) и дальнейшие измерения теряют смысл [13]. В [12] также обсуждаются принципиальные отличия методов циклирования скорости и релаксации напряжения. При изменении скорости напряжение измеряется на стадии насыщения скачка, т.е. при динамическом равновесии между накоплением дислокаций и возвратом в новых условиях деформации. Соответствующий активационный объем характеризует, скорее, процесс квазистационарной деформации, а не термоактивированного скольжения дислокаций в объеме материала. Ранее проблемы корректной оценки скоростной чувствительности напряжения методом циклирования

скорости и преимущества метода релаксации напряжения обсуждались в работе [14]. В [15] сообщалось, что даже в обычных поликристаллах меди ( $d \sim 1,2$  мкм) при комнатной температуре процессы возврата существенно влияют на кинетику пластической деформации.

Проблемы измерения скоростной чувствительности напряжения течения, расчета величины и температурной зависимости активационного объема для обсуждения механизмов пластической деформации ультрамелкозернистых материалов в широком интервале температур определяют целесообразность дальнейших исследований.

В настоящей работе изучено влияние упрочнения и динамического возврата на релаксацию напряжения и активационный объем пластической деформации УМЗ меди в интервале температур 77–295 К.

## 2. Методика

Исследованы поликристаллы бескислородной меди Cu–OF чистой 99,98%, приготовленные из цилиндрических заготовок, которые отжигали в вакууме при температуре 873 К и деформировали при комнатной температуре методом равноканальной угловой гидроэкструзии (УГЭ). Начальный диаметр заготовок составлял 13 мм и практически не изменялся после пяти проходов по маршруту  $B_c$  в равноканальной матрице с углом между каналами 90°. Суммарная накопленная деформация  $\epsilon_{\Sigma}$  составляла  $\sim 5,7$ . Технические детали метода УГЭ описаны в [16].

Из полученных заготовок с помощью электроискровой резки и специального штампа вырезали плоские образцы в виде двойной лопатки с размерами рабочей части после полировки 15×3×0,5 мм.

Микроструктуру образцов изучали с помощью многофункционального дифрактометра EPMYREAN в излучении медного анода. Для определения ширины инструментального профиля использовали эталон LaB<sub>6</sub>. Анализ физического уширения профилей рентгеновских пиков и определение параметров микроструктуры поликристаллов проводили методом аппроксимации с помощью функции Фойгта [17]. Процедура аппроксимации подробно описана в [11], где изучалась микроструктура этого материала после четырех УГЭ. Как видно из табл. 1, рентгеновские характеристики УМЗ образцов Cu–OF после четырех и пяти УГЭ имеют близкие значения, что указывает на подобие их микроструктуры.

Таблица 1. Рентгеновские параметры микроструктуры

Cu–OF	$\langle D \rangle_v$ , нм	$\langle \epsilon_L^2 \rangle^{1/2}$ , $10^{-3}$	$\rho$ , $10^{15} \text{ м}^{-2}$
5 УГЭ	110	3,8	0,96
4 УГЭ [11]	80	4,2	1,10

$\langle D \rangle_v$  — средний по объему размер ОКР,  $\langle \epsilon_L^2 \rangle^{1/2}$  — среднеквадратичная микродеформация,  $\rho$  — плотность дислокаций.

Образцы Cu–OF (5 УГЭ) деформировали в режиме квазистатического растяжения с постоянной скоростью штока, которая соответствовала начальной скорости деформации  $\dot{\epsilon} = 1,1 \cdot 10^{-4} \text{ с}^{-1}$ . Измерения проводили в интервале температур 77–295 К в дьюаре с газообразным гелием, температура поддерживалась с помощью паров жидкого азота во внешнем дьюаре и электронагревателя вокруг образца. Зависимости «истинное напряжение  $\sigma$ –истинная деформация  $\epsilon$ » при фиксированной температуре рассчитывали стандартным способом с погрешностью по напряжению  $\sim 0,25$  МПа, по деформации  $\sim 2 \cdot 10^{-4}$ . По кривым  $\sigma$ – $\epsilon$  для 1–3-х образцов при каждой температуре оценивали интервал устойчивой деформации, оптимальный для обсуждения температурных зависимостей напряжения течения и релаксации напряжения.

Кривые релаксации приложенного напряжения регистрировали в течение времени  $t = 100$ –425 с после остановки привода штока. Для аппроксимации экспериментальных кривых использовали уравнение релаксации напряжения при термофлуктуационном движении дислокаций (2)

$$\Delta\sigma(t) = \sigma(0) - \sigma(t) = \alpha \ln(\beta t + 1), \quad (7)$$

где  $\Delta\sigma(t)$  — релаксация напряжения за время  $t$ ,  $\alpha = \frac{kT}{V_a}$

и  $\beta = \frac{M \dot{\epsilon}(0)}{\alpha}$  — параметры релаксации, зависящие от

температуры и напряжения,  $V_a = M_T kT \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \sigma}$  — экспе-

риментальный (кажущийся) активационный объем, где  $M_T = 3,06$ ,  $M$  — эффективный модуль системы образец–машина,  $\dot{\epsilon}(0)$  — скорость деформации при  $t = 0$  с (при активной деформации). Модуль  $M$  рассчитывали

по формуле  $\frac{1}{M} = \frac{1}{E} + \frac{S_0}{Kl_0}$ , где  $E$  — модуль Юнга меди

( $\sim 112$  ГПа),  $S_0$  — площадь поперечного сечения образца,  $l_0$  — начальная длина рабочей части образца,  $K$  — жесткость машины ( $\sim 1,2 \cdot 10^6$  Н/м).

При расчетах учитывали, что, согласно (1),  $\Delta\sigma(t) = \Delta\sigma^*(t) + \Delta\sigma_i(t)$ , где  $\Delta\sigma_i(t)$  — изменение внутреннего напряжения вследствие изменения микроструктуры при релаксации. В линейном приближении  $\Delta\sigma_i(t) = \theta_r \Delta\sigma(t) / M$ , где  $\theta_r$  — коэффициент деформационного упрочнения при релаксации, поэтому учет упрочнения в (7) сводился к перенормировке  $\Delta\sigma^* = \Delta\sigma(1 + \theta_r / M)$ . Величину  $\theta_r$  оценивали методом повторных нагружений, предложенным в [18]. Для оценки изменения относительной плотности подвижных дислокаций при фиксированном времени релаксации  $t = 100$  с использовали процедуру [19] в предположении степенной зависимости плотности дислокаций от скорости деформации.

Зависимости напряжения течения при фиксированной деформации  $\sigma_\varepsilon(T)$  и активационного объема  $V_a(T)$ , рассчитанного по кривым релаксации, использовали для обсуждения механизмов, контролирующих скорость пластической деформации УМЗ Cu–OF в изученном интервале температур.

### 3. Результаты и обсуждение

#### 3.1. Кривые растяжения

Влияние температуры на форму кривых растяжения «напряжение  $\sigma$ –деформация  $\varepsilon$ » УМЗ Cu–OF (после 5 проходов УГЭ) иллюстрирует рис. 1. Зависимости  $\sigma(\varepsilon)$  в истинных координатах типичны для поликристаллов меди с размером зерна 200–500 нм: прочность и пластичность материала увеличивается с понижением температуры [10,11]. При деформациях  $\varepsilon \leq 0,013$  высокий коэффициент упрочнения  $\theta_a \sim 10^4$  МПа слабо зависит от температуры, однако быстро уменьшается с деформацией (см. вставку на рис. 1). В этом случае нельзя исключать влияние упругопластического перехода, когда реальная скорость деформации образца не соответствует заданной скорости тяги машины. Ниже будет показано, что в этом интервале полная глубина релаксации напряжения быстро увеличивается с деформацией. Уменьшение  $\theta_a$  с деформацией приводит к потере устойчивости в интервалах  $\varepsilon \geq 0,022$  при 200–295 К и  $\varepsilon \geq 0,063$  при 77 К. В этом случае локальная деформация существенно превышает среднее значение по образцу. Таким образом, общий для указанных температур интервал деформаций, в котором влияние неустойчивых процессов минимально, составляет  $\varepsilon \approx 0,013$ –0,019.

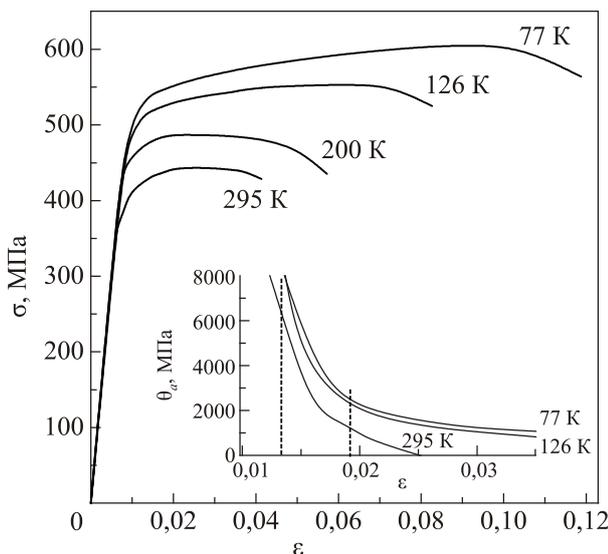


Рис. 1. Кривые растяжения  $\sigma$ – $\varepsilon$  УМЗ Cu–OF в истинных координатах. На вставке: коэффициент деформационного упрочнения  $\theta_a$  при различных температурах. Вертикальный пунктир  $\varepsilon = 0,016 \pm 0,003$  — область регистрации кривых релаксации приложенного напряжения (см. текст).

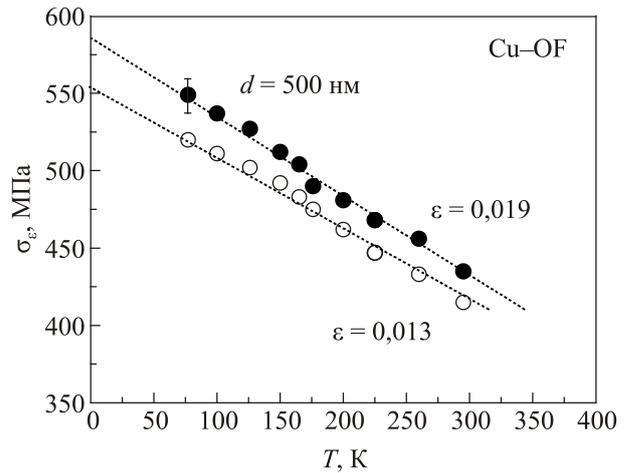


Рис. 2. Температурные зависимости напряжения течения  $\sigma_\varepsilon$  УМЗ Cu–OF при деформациях  $\varepsilon = 0,013$  (открытые символы) и 0,019 (черные символы).

Зависимости напряжения течения  $\sigma_\varepsilon(T)$ , где индекс соответствует нижней или верхней границам указанного интервала деформаций, представлены на рис. 2. Данные слабо отличаются от зависимостей  $\sigma_{0,2}(T)$  для этого материала после 4-х УГЭ [11], что объясняется близкими параметрами микроструктуры (см. табл. 1). При температуре 295 К средняя величина  $\sigma_\varepsilon = (420 \pm 10)$  МПа характерна для предела текучести УМЗ меди с размерами зерен  $d \sim 200$ –500 нм в [10,20].

Согласно (1), данные на рис. 2 можно представить в виде  $\sigma_\varepsilon = \sigma_i + \sigma^*(T, \varepsilon)$ , где внутреннее напряжение  $\sigma_i$  будем считать слабо зависящим от температуры. Для оценки  $\sigma_i$  воспользуемся соотношением  $\sigma_i = \alpha_p \mu b M_T \rho^{1/2}$ , приняв следующие значения: постоянная взаимодействия  $\alpha_p = 0,35$  [20], модуль сдвига  $\mu = 42,1$  ГПа, длина вектора Бюргерса  $b = 0,256$  нм, ориентационный фактор  $M_T = 3,06$ . Экспериментальным данным при  $\varepsilon \sim 0,013$  и 0,019 на рис. 2 должна соответствовать плотность дислокаций  $\rho \approx (1,1$ – $1,2) \cdot 10^{15} \text{ м}^{-2}$ , которая в разумных пределах превышает исходную  $\rho \sim 0,96 \cdot 10^{15} \text{ м}^{-2}$  (см. табл. 1). Если принять для внутренних (атермических) напряжений при  $\varepsilon = 0,013$  и 0,019 значения  $\sigma_i = 410$  и 430 МПа, то зависимости эффективного напряжения  $\sigma^*(T)$  будут иметь вид, представленный на рис. 3.

При сделанных предположениях значения  $\sigma^* \approx 7$ –14 МПа при  $T = 295$  К на рис. 3 согласуются с напряжением трения решетки в УМЗ меди  $\sim 30$  МПа [20] и эффективным напряжением  $\sim 6$ –20 МПа в КЗ меди [21,22]. В пределах разброса зависимости  $\sigma^*(T)$  удовлетворительно аппроксимируются соотношением (4) при  $p = 1$  (с наклоном  $(d\sigma^*/dT) \sim -0,43$  МПа/К) и  $p = 0,67$  (пунктир на рис. 3). Учитывая, что эффективное расстояние между короткодействующими препятствиями  $L^* \propto (1/\tau^*)^{1-p}$  [23], такая аппроксимация не определяет однозначно статистику их распределения вдоль дислокации. Согласно (4),  $\sigma^*$  стремится к нулю

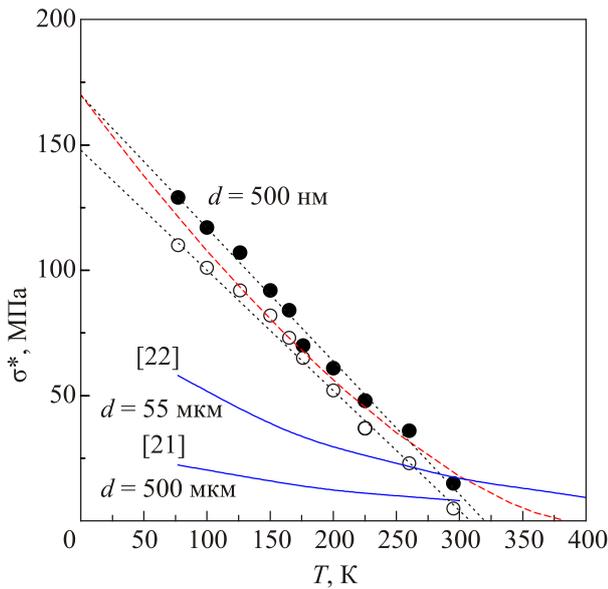


Рис. 3. (Онлайн в цвете) Температурные зависимости эффективного напряжения  $\sigma^*$ . Символы те же, что и на рис. 2. Пунктирные линии: аппроксимация выражениями (1) и (4) с учетом  $\sigma^* = M_T \tau^*$  при:  $p = 1$ ,  $\sigma_i = 410$  и  $430$  МПа (черные);  $p = 0,67$ ,  $\sigma_i = 420$  МПа (красная). Сплошные линии (синие) — данные для КЗ меди из [21,22].

при значениях  $T_0$  в интервале  $\sim 325\text{--}380$  К, а пороговые значения  $\sigma_c$  при  $T = 0$  составляют  $\sim 150\text{--}170$  МПа.

С помощью соотношений (2) и (3), приняв  $A = \ln(\frac{\dot{\epsilon}_0}{\dot{\epsilon}}) \approx 20$ , характерное для ГЦК кристаллов [1,2],

можно оценить энергетический параметр барьера  $H_0$  при  $\sigma^* = 0$ , который составляет  $\approx 0,56\text{--}0,66$  эВ. Эти значения близки к энтальпии активации смещения атомов в границе зерна ( $\sim 0,7$  эВ), энергии миграции вакансий ( $\sim 0,78$  эВ) или зернограничной диффузии в УМЗ в меди ( $\sim 0,64\text{--}1,08$  эВ) [6]. Они также соответствуют механизму пересечения дислокаций в УМЗ меди ( $\sim 0,54$  эВ) [11], энергии образования ступеньки при пересечении дислокаций [24] или энтальпии активации поперечного скольжения при 300 К ( $\sim 0,73\text{--}0,99$  эВ) [3]. Таким образом, полученная оценка  $H_0$  не позволяет однозначно установить механизм, контролирующей скорость пластической деформации. Отметим, что расчет  $H_0$  по зависимости  $\sigma^*(T)$  является приблизительным даже при минимальных пластических деформациях из-за неидентичной микроструктуры образцов, обусловленной деформационной предысторией УМЗ материала.

### 3.2. Релаксация напряжения

В реальном эксперименте по релаксации напряжения падение приложенного напряжения  $\Delta\sigma(t) = \Delta\sigma^*(t) + \Delta\sigma_i(t)$  происходит в основном за счет эффективного напряжения  $\Delta\sigma^*(t)$ , если не изменяется микроструктура, т.е.  $\Delta\sigma_i = \text{const}$ , при этом равенство  $\Delta\sigma = \Delta\sigma_i$  за время эксперимента, как правило, не дос-

тигается [21,25]. Тем не менее величина полной (максимальной) релаксации напряжения  $\Delta\sigma_m$  за фиксированное время  $t$  представляет практический интерес.

Зависимость глубины релаксации  $\Delta\sigma_m(t = 100 \text{ с})$  от деформации растяжения  $\epsilon$  при различных температурах иллюстрирует рис. 4. При малых  $\epsilon$  и высоких температурах  $\Delta\sigma_m$  быстро увеличивается с деформацией. При этих условиях коэффициент упрочнения  $\theta_a$ , наоборот, быстро уменьшается (см. вставку на рис. 1). Это позволяет предположить, что зависимости на рис. 4 обусловлены эволюцией микроструктуры при релаксации, которая характеризуется коэффициентом упрочнения  $\theta_r$ . Коэффициент  $\theta_a$ , который определяется скоростью накопления дислокаций при заданной скорости деформации, может отличаться от коэффициента  $\theta_r$  при релаксации, который определяется изменением плотности подвижных дислокаций. Поэтому зависимость  $\theta_r(\epsilon)$ , необходимую для учета изменений микроструктуры, оценивали методом повторного нагружения образца в конце релаксации до напряжения в ее начале [18].

Эксперименты показали, что в интервале  $\epsilon = 0,013\text{--}0,019$  величина  $\theta_r$  уменьшается с деформацией на  $\sim 20\%$  при 295 К и на  $\sim 5\%$  при 77 К. При 295 К и 77 К минимальные значения  $\theta_r$  составляют  $\sim 600$  МПа и  $\sim 900$  МПа, соответствующая поправка на упрочнение  $\theta_r/M \sim 5\%$  и  $8\%$ , а поправка по кривой растяжения  $\theta_a/M \sim 10\%$  и  $12\%$  соответственно, т.е.  $\theta_a \geq \theta_r$ . Такая незначительная перенормировка напряжения  $\Delta\sigma_m^* = \Delta\sigma_m(1 + \theta_r/M)$  может ослабить зависимости  $\Delta\sigma_m(\epsilon)$  на рис. 4, однако полностью их не объясняет, по крайней мере, при высоких температурах. Чтобы уменьшить влияние деформации, дальнейшие эксперименты по релаксации напряжения проводили в середине интервала  $\epsilon = 0,013\text{--}0,019$ .

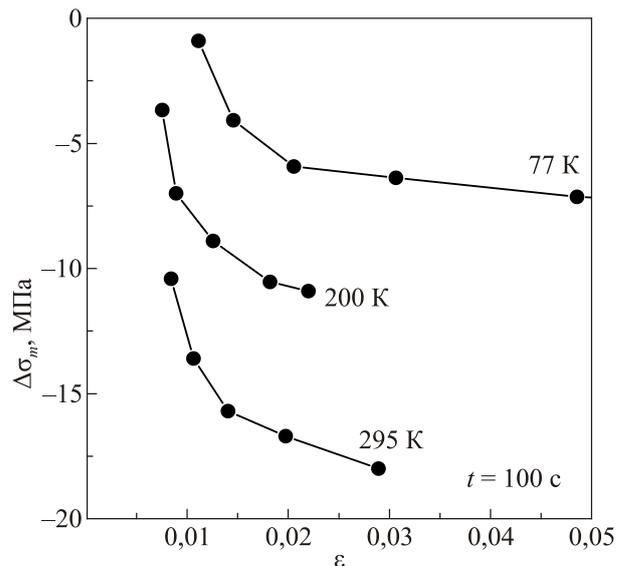


Рис. 4. Полная глубина релаксации напряжения  $\Delta\sigma_m$  в зависимости от деформации растяжения  $\epsilon$ . Время релаксации  $t = 100$  с.

Величина  $\theta_r/M$  определяется процессами упрочнения и возврата, и разделить их вклады методом [18] не представляется возможным. В этом случае целесообразно оценить относительное изменение плотности дислокаций при релаксации  $\rho_m/\rho_{m0}$ , где  $\rho_{m0}$  — плотность при  $t=0$  с. Для этого можно воспользоваться процедурой, основанной на степенной зависимости между плотностью подвижных дислокаций и их скоростью [19]. По нашим оценкам для  $t=100$  с отношение  $\rho_m/\rho_{m0}$  при  $T=295, 200$  и  $126$  К составляет  $\sim 0,61, \sim 0,67$  и  $\sim 0,51$  соответственно. Наша оценка при  $295$  К согласуется с данными для УМЗ меди ( $\sim 0,64$ ), полученными в [19]. Отношение  $\rho_m/\rho_{m0}$ , характеризующее иммобилизацию дислокаций при релаксации напряжения, несколько выше, чем отношение  $\theta_r/M$ , характеризующее приращение внутренних напряжений. Это косвенно указывает на то, что коэффициент  $\theta_r$  определяется балансом упрочнения за счет новых дефектов при иммобилизации дислокаций и возврата вследствие аннигиляции дислокаций в процессе релаксации.

Рассмотрим влияние температуры на параметры релаксации в уравнении (7). Кривые релаксации напряжения в координатах, соответствующих логарифмическому закону, представлены на рис. 5. Данные приведены с учетом перенормировки  $\theta_r/M$ . При подборе параметров релаксации  $\alpha$  и  $\beta$  в (7) учитывалось, что их произведение определяется характеристиками установки и условиями эксперимента и не должно существенно зависеть от температуры и деформации (см. вставку на рис. 5). Поскольку параметр  $\beta$  зависит от  $T$ , масштаб времени на рис. 5 определяется температурой, например, полное время релаксации составляет от 70 до 150 с при 77 и 295 К соответственно. Временной масштаб по-

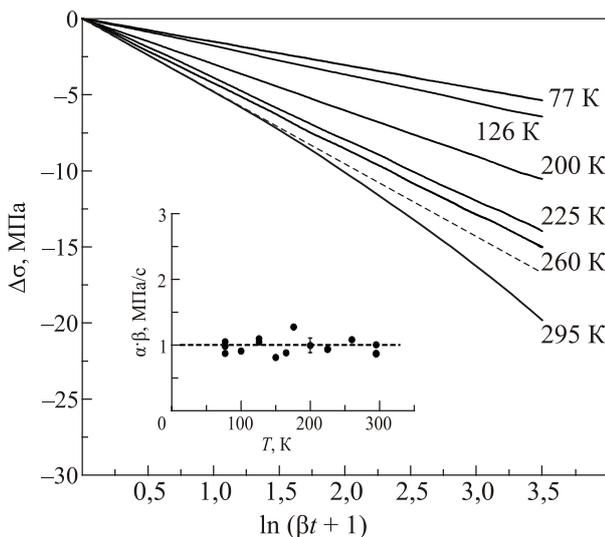


Рис. 5. Кривые релаксации  $\Delta\sigma(t)$  в координатах, соответствующих уравнению (7). На вставке: произведение параметров  $\alpha$  и  $\beta$ , использованных для аппроксимации уравнением (7) кривых релаксации при различных температурах и деформациях.

зволяет учесть, что при низких температурах даже небольшая релаксация напряжения соответствует падению скорости пластической деформации на несколько порядков, а регистрация релаксации ограничена чувствительностью приборов. Видно, что при всех температурах кроме 295 К релаксация приложенного напряжения  $\Delta\sigma(t)$  удовлетворительно описывается логарифмическим законом. Наклон прямых, определяющий параметр  $\alpha$  в (7), монотонно увеличивается с температурой. Значения  $\alpha$  в дальнейшем использованы для расчета активационного объема пластической деформации.

При  $T=295$  К скорость релаксации напряжения выше, чем предсказывает логарифмический закон (7). При этом полная релаксация  $\Delta\sigma_m \sim 20$  МПа за  $t=150$  с превышает величину эффективного напряжения  $\sigma^* \approx 7-14$  МПа, рассчитанную как разность  $\sigma^* = \sigma_e - \sigma_i$  (см. рис. 3). Для изучения этих особенностей целесообразно увеличить время релаксации. На рис. 6 представлены соответствующая экспериментальная зависимость  $\Delta\sigma(t)$  (кривая 1) и ее логарифмическая аппроксимация (7) (кривая 2). Как и на рис. 5, при малых  $t$  кривые 1 и 2 удовлетворительно согласуются при  $\alpha = 4,9$  МПа. При  $t=425$  с полная релаксация  $\Delta\sigma_m$  составляет  $\sim 27$  МПа, т.е. выполняется неравенство  $\Delta\sigma_m > \sigma^*$  (см. рис. 3). Поскольку в любой момент времени  $\Delta\sigma(t) = \Delta\sigma^*(t) + \Delta\sigma_i(t)$  экспериментальный «избыток» релаксации можно объяснить уменьшением внутренних напряжений на величину  $\Delta\sigma_i(t)$  вследствие процессов возврата.

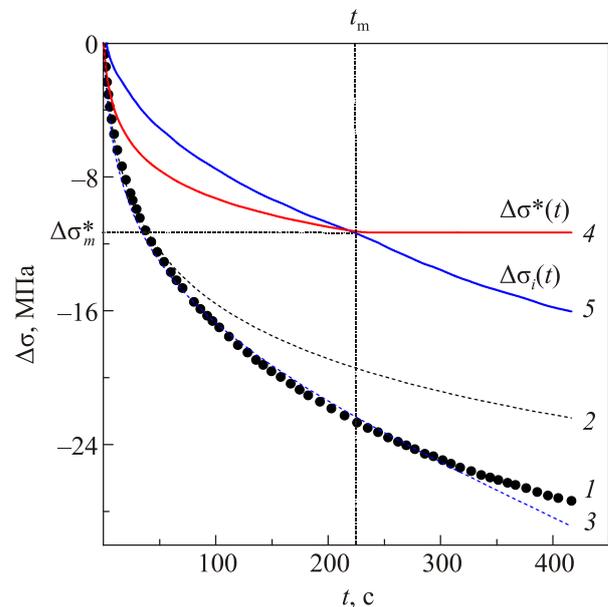


Рис. 6. (Онлайн в цвете) Релаксация напряжения при  $T=295$  К. Кривая 1 — эксперимент, 2 — аппроксимация уравнением (7) при  $\alpha = 4,9$  МПа, 3 — аппроксимация уравнением (9) при  $\alpha = 3,8$  МПа и  $r = 0,025$  МПа/с, 4 — уравнение релаксации (7) при  $\alpha = 2,5$  МПа, которое соответствует условию насыщения  $\Delta\sigma^*(t_m) = \Delta\sigma_m^*$ , 5 — релаксация внутренних напряжений  $\Delta\sigma_i(t)$  вследствие возврата,  $r = 0,022$  МПа/с.

Анализ термофлуктуационного уравнения релаксации напряжений с учетом упрочнения и возврата при релаксации был предложен в [26]. Предполагается, что при релаксации внутреннее напряжение  $\sigma_i$  увеличивается пропорционально деформации и уменьшается пропорционально времени, т.е.

$$\Delta\sigma_i = \theta_a \Delta\varepsilon - r \Delta t, \quad (8)$$

где  $\theta_a = \left( \frac{\partial\sigma_i}{\partial\varepsilon} \right)_{t,T}$  — коэффициент деформационного

упрочнения в начале релаксации, а  $r = -\left( \frac{\partial\sigma_i}{\partial t} \right)_{\varepsilon,T}$  —

скорость возврата. При постоянных  $\theta_a$  и  $r$  связь между приложенным напряжением и временем релаксации в [26] описывается выражением

$$\Delta\sigma(t) = \frac{\alpha}{1 + \theta_a/M} \ln \left[ \dot{\varepsilon}(0)M (1 + \theta_a/M) \left( \frac{1}{r} \right) \left( \exp\left(\frac{r}{\alpha}\right)t - 1 \right) + 1 \right]. \quad (9)$$

Кривая 3 на рис. 6, соответствующая выражению (9), удовлетворительно описывает эксперимент при  $r = 0,025$  МПа/с и  $\alpha = 3,8$  МПа. Учет возврата, таким образом, приводит к заметному уменьшению  $\alpha$  по сравнению с уравнением (7) (кривая 2). Скорость возврата  $r = 0,025$  МПа/с при заданной скорости активной деформации  $\sim 10^{-4} \text{ с}^{-1}$  соответствует коэффициенту разупрочнения  $\sim 250$  МПа. С учетом экспериментальной оценки  $\theta_r \approx 600$  МПа это соответствует тому, что при 295 К скорость упрочнения примерно в три раза превышает скорость возврата. Из (9) следует, что при больших временах возврат полностью определяет кривую релаксации напряжения, которая стремится к прямой с наклоном  $\sim r/(1 + \theta_a/M)$ . К сожалению, литературные данные о скорости возврата в УМЗ поликристаллах авторам неизвестны, но полученная величина  $r$  в УМЗ меди на один–два порядка превышает значения для монокристаллов  $\alpha$ -Fe [26] и NaCl [27], а также поликристаллов InCd [27].

Выражение (9) хорошо описывает ускорение релаксации приложенного напряжения вследствие возврата, однако не позволяет проследить за кинетикой эффективного напряжения, которое является важной характеристикой механизма термофлуктуационного движения дислокаций. Такую оценку можно провести с учетом вклада термической и атермической компонент приложенного напряжения (см. рис. 2, 3). Предположим, что в предельном случае в момент  $t = 0$  с среднее эффективное напряжение при 295 К  $\sigma^* \sim 11$  МПа (см. рис. 3) равно максимальной глубине релаксации эффективной компоненты напряжения  $\Delta\sigma_m^*$  в момент времени  $t_m$ . Этому условию отвечает логарифмический закон с постоянной  $\alpha = 2,5$  МПа (кривая 4 на рис. 6), согласно которому при  $t \geq t_m$  релаксируют только

внутренние напряжения. Для соответствия эксперименту (кривой 1) релаксация  $\Delta\sigma_i(t) = \Delta\sigma(t) - \Delta\sigma^*(t)$  должна соответствовать кривой 5. С небольшой погрешностью, связанной с перенормировкой, кривая 5 описывает кинетику возврата при релаксации. При больших  $t$  кривая  $\Delta\sigma_i(t)$  стремится к прямой с наклоном  $r \approx 0,022$ , что согласуется с оценкой по выражению (9). В отличие от [26,27], при малых  $t$  зависимость скорости возврата нелинейная по времени. По-видимому, это связано с предысторией поликристаллов УМЗ меди, которые в момент  $t = 0$  с отличаются высокой плотностью дислокаций и склонны к возврату, однако детальный анализ требует дополнительных исследований.

Для дальнейшего обсуждения механизмов термофлуктуационного движения дислокаций существенно, что релаксацию компоненты  $\Delta\sigma^*(t)$  на рис. 6 в условиях высокой скорости возврата при 295 К можно описать логарифмическим законом (7) (кривая 4) с параметром  $\alpha$ , меньшим, чем при аппроксимации соотношением (9) [26] (кривая 3), и существенно меньшим, чем при аппроксимации соотношением (7) без учета возврата (кривая 2).

### 3.3. Активационный объем

Зависимости  $V_a$  от температуры, рассчитанные при аппроксимации данных эксперимента соотношением (7), представлены на рис. 7. Светлые и темные символы соответствуют нижней и верхней границам интервала деформаций, при которых строились зависимости  $\sigma^*(T)$

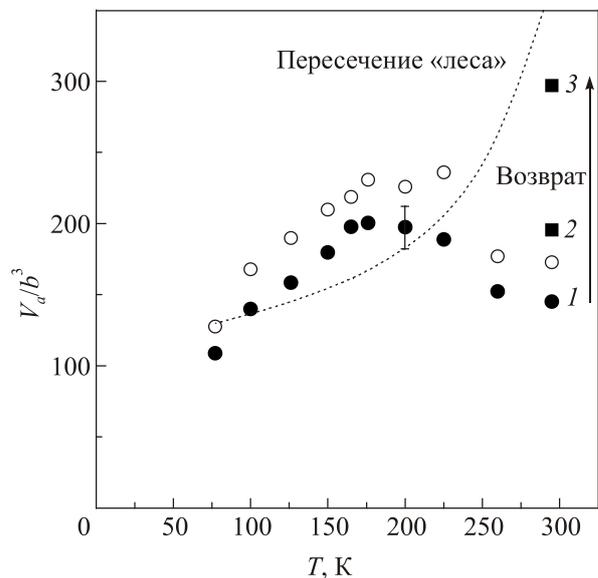


Рис. 7. Активационный объем  $V_a$  в зависимости от  $T$  при аппроксимации уравнением (7). Символы те же, что и на рис. 2. Пунктирная линия — зависимость  $V^*(T)$  согласно соотношению (6) при  $p = 2/3$  (см. текст). Значения при  $T = 295$  К — результаты расчета без учета возврата (точка 1) и с учетом возврата по уравнению (9) (точка 2) и уравнению (7) при условии насыщения  $\Delta\sigma^*(t_m) = \Delta\sigma_m^*$  (точка 3, см. текст).

на рис. 3. Видно, что большей деформации соответствует меньшая величина  $V_a$ . При геометрической интерпретации активационного объема,  $V^* \propto L \propto (\tau^*)^{p-1}$  [23], это соответствует увеличению  $\tau^*$  в результате накопления дислокаций леса. Особенностью УМЗ меди является немонотонный характер зависимости  $V_a(T)$ . Как указано выше (раздел 1), подобные зависимости в УМЗ материалах ранее наблюдались в [3–11], а для их объяснения привлекались различные механизмы, основанные на повышении роли границ зерен при пластической деформации [6,8].

В интервале  $T < 200$  К объем  $V_a$  увеличивается с температурой. Как видно на рис. 7, это качественно согласуется с зависимостью  $V^*(T)$  (пунктирная линия), которая построена по соотношению (6) при тех же значениях параметров теории, что и кривая  $\sigma^*(T)$  на рис. 3. Разница экспериментальной и теоретической оценок активационного объема объясняется переходными процессами, которые обсуждались в [14] и связаны с механическими приводами и сравнительно низкой жесткостью машины, а также возможной зависимостью жесткости от напряжения и температуры. Разная температурная чувствительность экспериментального  $V_a$  и эффективного активационного  $V^*$  объемов также указывает на погрешность учета упрочнения и возврата, зависящую от температуры. Отметим для сравнения, что по абсолютной величине приведенная чувствительность  $1/V_a(dV_a/dT) \sim \sim 2 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  существенно выше, чем чувствительность упругих модулей  $1/\mu(d\mu/dT) \sim -4 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  [28] и энергии дефекта упаковки  $1/f(df/dT) \sim -7 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  [29].

С увеличением температуры в интервале  $T \geq 200$  К объем  $V_a$  уменьшается, что противоречит термофлуктуационному механизму пересечения дислокаций леса (2)–(6). Отметим, что в этом интервале температур противоречие выражается только в обратной зависимости  $V_a(T)$  и не относится к зависимости  $V_a$  от  $\varepsilon$ . Как обсуждалось выше, это может быть следствием некорректной оценки  $V_a$  в более сложных условиях высокотемпературной релаксации, например, вследствие активизации поперечного скольжения и аннигиляции дислокаций. Для иллюстрации этого обстоятельства на рис. 7 при  $T = 295$  К, кроме оценки  $V_a$  (точка 1) с помощью соотношения (7), представлен результат расчета по соотношению (9) (точка 2) для постоянной скорости возврата [26]. Также приведено значение  $V_a$  (точка 3), которое соответствует предположению об определяющей роли возврата в УМЗ меди после полной релаксации эффективного напряжения (см. кривые 4, 5 на рис. 6). Из сравнения этих данных (точки 1, 2, 3 на рис. 7) видно, что учет процессов возврата при релаксации напряжения в УМЗ меди может существенно изменить не только величину активационного объема, но и вид его температурной зависимости в изученном интервале температур.

#### 4. Заключение

Методами растяжения с постоянной скоростью и релаксации напряжения в интервале температур 77–295 К изучена температурно-скоростная чувствительность напряжения течения УМЗ поликристаллов Cu–OF, приготовленных путем равноканальной угловой гидрокстружии.

При температурах ниже  $\sim 200$  К экспериментальные зависимости напряжения течения и активационного объема от температуры соответствуют механизму термически активированного пересечения дислокаций леса.

Выше  $\sim 200$  К наблюдается уменьшение активационного объема с ростом температуры, которое противоречит механизму пересечения леса. Одной из причин, объясняющих это противоречие, является динамический возврат.

Усиление роли возврата, стимулированное высокой плотностью дислокаций в УМЗ меди, приводит к значительной недооценке активационного объема, рассчитанного по релаксации напряжения при комнатной температуре.

Авторы благодарны С.В. Лубенцу за полезные дискуссии.

1. A. Seeger, *Philos. Mag.* **45**, 771 (1954).
2. U.F. Kocks, A.S. Argon, and M.F. Ashby, *Progr. Mater. Sci.* **19**, 288 (1975).
3. J. Bonneville, B. Escaig, and J.L. Martin, *Acta Metall.* **36**, 1989 (1988).
4. H. Conrad, *Mater. Sci. Eng. A* **341**, 216 (2003).
5. H. Conrad and K. Jung, *Scripta Materialia* **53**, 581 (2005).
6. H. Conrad and D. Yang, *J. Electron. Mater.* **31**, 4 (2002).
7. J. Chen, L. Lu, and K. Lu, *Scripta Materialia* **54**, 1913 (2006).
8. M. Kato, T. Fujii, and S. Onaka, *Mater. Transact.* **49**, 1278 (2008).
9. T. Kunimine, N. Takata, N. Tsuji, T. Fujii, M. Kato, and S. Onaka, *Mater. Transact.* **50**, 64 (2009).
10. S. Ocudo, H. Abe, Y. Miyajima, T. Fujii, S. Onaka, and M. Kato, *Mater. Transact.* **55**, 1525 (2014).
11. Н.В. Исаев, Т.В. Григорова, О.В. Мендюк, А.А. Давиденко, С.С. Полищук, В.Г. Гейдаров, *ФНТ* **42**, 1053 (2016) [*Low Temp. Phys.* **42**, 825 (2016)].
12. W. Blum, *Scripta Mater.* **146**, 27 (2018).
13. Y.M. Wang, and E. Ma, *Mater. Science Eng. A* **375**, 46 (2004).
14. B. Wielke, *Acta Metallurg.* **26**, 103 (1978).
15. C.-M. Kuo, C.-H. Lin, and Y.-C. Huang, *Mater. Science Eng. A* **396**, 360 (2005).
16. V. Spuskanyuk, O. Davydenko, A. Berezina, O. Gangalo, L. Sennikova, M. Tikhonovsky, and D. Spiridonov, *J. Mater. Proc. Techn.* **210**, 1709 (2010).
17. D. Balzar, *Voigt-Function Model in Diffraction Line-Broadening Analysis in Defect and Microstructure Analysis from Diffraction*, R.L. Snyder, H.J. Bunge, and J. Fiala (eds.),

- International Union of Crystallography Monographs on Crystallography*, Oxford University Press, New York (1999), No. 10, p. 94.
18. G. Sargent, G. Jones, and H. Conrad, *Scripta Metall.* **3**, 481 (1969).
  19. L. Lu, T. Zhu, Y. Shen, M. Dao, K. Lu, and S. Surech, *Acta Mater.* **57**, 5165 (2009).
  20. J. Gubicza, N.Q. Chinh, J.L. Labar, S. Dobatkin, Z. Hegedus, and T.G. Langdon, *J. Alloys Comp.* **483**, 271 (2009).
  21. V.I. Dotsenko and A.I. Landau, *Mater. Sci. Eng.* **22**, 101 (1976).
  22. M. Bocek, H. Schneider, and P. Sindelar, *Mater. Sci. Eng.* **8**, 161 (1971).
  23. J. Friedel, *Dislocations*, Pergamon, London (1964) [Ж. Фридель, *Дислокації*, Мир, Москва (1967)].
  24. S. Basinski, *Philos. Mag.* **4**, 393 (1959).
  25. T. Kruml, O. Coddet, and J.L. Martin, *Acta Mater.* **56**, 333 (2008).
  26. P. Groh and R. Conte, *Acta Metallurg.* **19**, 895 (1971).
  27. С.В. Лубенец, *ФТТ* **44**, 72 (2002).
  28. W.C. Overton, Jr., and J. Gaffney, *Phys. Rev.* **98**, 969 (1955).
  29. P. Heino, L. Perondi, and K. Kaski, *Phys. Rev. B* **60**, 14625 (1999).

---

#### Релаксація напруження в ультрадрібнозернистій міді при низьких гомологічних температурах

М.В. Ісаєв, Т.В. Григорова, О.А. Давиденко,  
С.С. Поліщук

Вивчено температурну й швидкісну чутливість напруження плину ультрадрібнозернистої (УДЗ) міді, яку було

виготовлено методом рівноканальної кутової гідроекструзії. Експерименти з розтягування та релаксації напруження проводилися в інтервалі температур 77–295 К. Встановлено, що зі збільшенням температури напруження плину монотонно зменшується, а активаційний об'єм досягає максимуму  $\sim 190b^3$  при температурі  $\sim (200 \pm 20)$  К. Для обговорення результатів експерименту залучаються два механізми термічно активованої пластичної деформації: перетинання дислокацій «лісу» та динамічне повернення, яке здатне істотно змінювати кінетику релаксації прикладеного напруження в УДЗ міді.

Ключові слова: ультрадрібнозернистий метал, механічні властивості, механізм деформації, активаційний об'єм.

#### Stress relaxation in ultra-fine-grained copper at low homologous temperatures

N.V. Isaev, T.V. Hryhorova, O.A. Davydenko,  
and S.S. Polishchuk

Temperature and strain-rate sensitivities of flow stress of ultra-fine grained (UFG) copper, prepared by equal-channel angular hydroextrusion, were studied. Tensile tests and stress relaxation tests were carried out in the temperature range 77–295 K. As temperature increase, flow stress decrease monotonously whereas activation volume reaches the maximum value of  $\sim 190b^3$  at temperature  $\sim 200$  K. These experimental results are discussed in terms of two mechanisms of thermally activated plastic deformation: “forest” intersection and dynamic recovery, which able to significantly affect the kinetics of stress relaxation in UFG copper.

Keywords: ultrafine grained metal, mechanical properties, deformation mechanism, activation volume.