

Релаксация структуры никеля, полученного кручением под квазигидростатическим давлением, путем ультразвуковой обработки

Самигуллина А.А.[†], Хисамов Р.Х., Мулюков Р.Р.

[†] asiya_nazarova@mail.ru

Институт проблем сверхпластичности металлов РАН, ул. Халтурина 39, 450001 Уфа

Ultrasonic treatment induced structure relaxation in nickel processed by high pressure torsion

A.A. Samigullina, R.Kh. Khisamov, R.R. Mulyukov

Institute for Metals Superplasticity Problems RAS, Khalturin St. 39, 450001 Ufa

Исследовано влияние ультразвуковой обработки на релаксацию структуры никеля, наноструктурированного с помощью интенсивной пластической деформации кручением под квазигидростатическим давлением. Показано, что в результате ультразвукового воздействия с амплитудой 40 МПа происходит релаксация деформированной структуры: снижение внутренних напряжений, увеличение среднего размера зерен за счет уменьшения доли малоугловых границ, и как следствие, небольшое снижение микротвердости и повышение термостабильности.

Ключевые слова: ультразвуковая обработка, интенсивная пластическая деформация, работа выхода электрона.

The effect of ultrasonic treatment on the structure relaxation of nickel nanostructured by high pressure torsion was investigated. It was shown that in the case of ultrasonic treatment with the amplitude of 40 MPa a relaxation of the deformed structure is observed. The structure relaxation is justified by the reduction of internal stresses and by the increase in the mean grain size. The grain size increases due to disappearance of a part of low-angle grain boundaries and, as a consequence, a small reduction of microhardness and an increase of thermal stability are observed.

Keywords: ultrasonic treatment, severe plastic deformation, work function of electrons.

1. Введение

Наноструктурные (НК) материалы, полученные методами интенсивной пластической деформации (ИПД), имеют перспективы широкого применения благодаря своим уникальным физическим, функциональным и механическим свойствам, таким как высокая прочность, износостойкость, твердость, высокие усталостные свойства и др. [1-4]. Однако, из-за большого наклепа, такие материалы характеризуются значительными искажениями кристаллической решетки, источниками которых являются неравновесные границы зерен, и повышенной плотностью дислокаций [4,5]. Высокие внутренние напряжения приводят к таким проблемам, как низкая пластичность и термическая нестабильность микроструктуры НК материалов.

Для возврата неравновесной структуры НК материалов, полученных методами ИПД, обычно используют от-

жиги, однако этот способ может быть не всегда удобен и экономичен в приложении. Поэтому весьма актуальным является поиск иных способов физического воздействия на материалы с целью получения в них оптимального комплекса свойств, необходимого для их эксплуатации.

Одним из перспективных методов улучшения механических свойств НК материалов может являться ультразвуковая обработка (УЗО). Ультразвуковая волна, проходя через материал, взаимодействует со структурными дефектами: дислокациями, дислокационными кластерами, границами зерен и субзерен, примесями, вызывая изменения структуры и свойств материала. Эти изменения зависят главным образом от амплитуды ультразвука. В настоящее время существует большое количество работ по влиянию ультразвукового воздействия на материал, однако в основном, эти исследования направлены на упрочняющее действие ультразвука, в них используется ультразвук высокой амплитуды и имеет

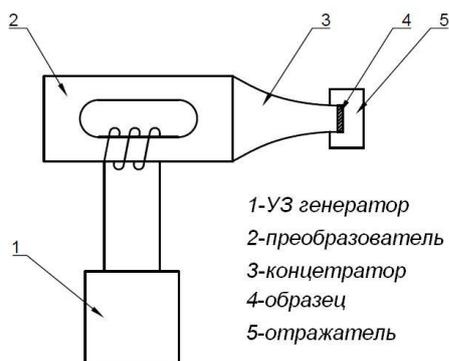


Рис. 1. Схема ультразвуковой обработки УМЗ никеля, полученного кручением под квазигидростатическим давлением.

место локализация воздействия на поверхности [6-11]. С помощью методов компьютерного моделирования было показано, что ультразвуковое воздействие низкой амплитуды способно оказывать релаксирующее воздействие на деформированную структуру [12], одним из механизмов которого является движение различных дислокационных кластеров в поле ультразвуковой волны [13-15]. Воздействие ультразвука высокой амплитуды, напротив, приводит к упрочнению материала [16].

В настоящей работе проводится исследование релаксирующего воздействия УЗО на структуру НК никеля, полученного кручением под квазигидростатическим давлением (КГД), и сравнение его с низкотемпературным релаксационным отжигом. Изменения структуры исследовали с помощью просвечивающей электронной микроскопии, рентгеноструктурного анализа, измерений микротвердости. Кроме этого о релаксации структуры судили по результатам измерения работы выхода электрона. Относительно недавно было показано, что эта характеристика существенно зависит от степени неравновесности структуры материала [17,18]. Исследовали также термическую стабильность структуры никеля в двух состояниях: после КГД и после УЗО.

2. Методика эксперимента

В работе исследовали никель чистотой 99,98%. Заготовки толщиной 1 мм и диаметром 5 мм были подвергнуты ИПД методом кручения под квазигидростатиче-

ским давлением 6 ГПа на наковальнях Бриджмена при комнатной температуре до истинной логарифмической степени деформации $\epsilon = 7$. В результате были получены образцы толщиной 0,25 мм. Полученные образцы подвергли двум видам релаксационной обработки: отжигу и ультразвуковому воздействию. Отжиг проводили при температуре 150°C в течение 25 минут. Ультразвуковая обработка (УЗО) осуществлялась по схеме, представленной на рис. 1, где стоячая ультразвуковая волна частотой 22 кГц и амплитудой напряжения 40 МПа, проходя через образец, отражается стальным отражателем. Образец, концентратор и отражатель представляют собой при этом единую волноводную систему. Время ультразвуковой обработки – 30 с.

Электронно-микроскопические исследования проводились на просвечивающем электронном микроскопе JEM2000EX. Фольги для исследований готовили стандартными методами на приборе для струйной полировки.

Исследование внутренних напряжений (микронапряжений второго рода) проводилось методом рентгеноструктурного анализа на аппарате ДРОН-4. Образцы подвергались механической полировке, а затем электролитической полировке для снятия наклепанного поверхностного слоя. Съемка проводилась в пошаговом режиме с шагом 0,05° и временем экспозиции 5 с. Обработка данных осуществлялась с помощью программы X-RAY.

Работа выхода электрона определялась методом измерения контактной разности потенциалов электронным пучком (метод Андерсона) [17,18]. Измерялась зависимость тока задержки на образце I от потенциала задержки U . Непосредственно перед измерениями образцы подвергались ионной очистке. Все измерения проводились в вакууме не хуже 10^{-3} Па. Строились кривые $I(U)$ для образцов, подвергнутых КГД, отжигу при 150°C, УЗО, а также для крупнокристаллического (КК) никеля, полученного отжигом при 700°C в течение 2 часов. Работу выхода электрона определяли по смещению кривых $I(U)$ по оси потенциала по формуле: $eU = \varphi - \varphi_0$, где φ – работа выхода образца в состояниях после КГД, отжига при 150°C и УЗО, φ_0 – работа выхода КК образца. Погрешность измерений составила 0,05 эВ.

Для исследования термической стабильности образцы никеля после КГД и УЗО подвергались отжигам при температурах 130-500°C, после чего проводились

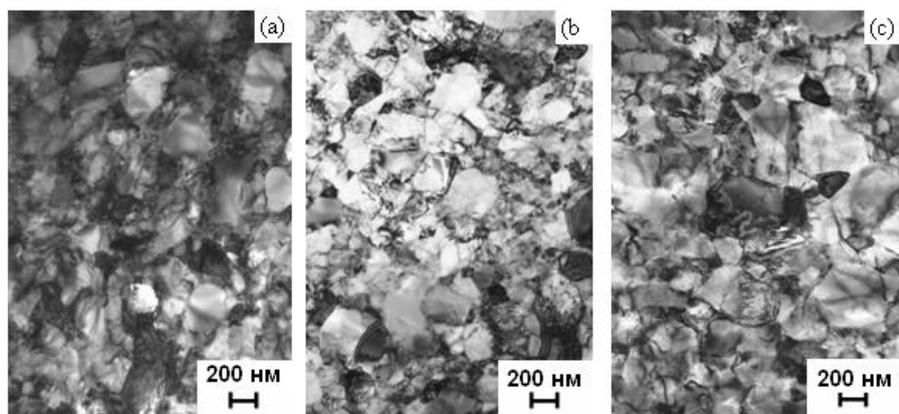


Рис. 2. Микроструктура никеля в состояниях: (а) после КГД, (б) после КГД и отжига при 150°C в течение 25 минут, (с) после КГД и УЗО с амплитудой 40 МПа.

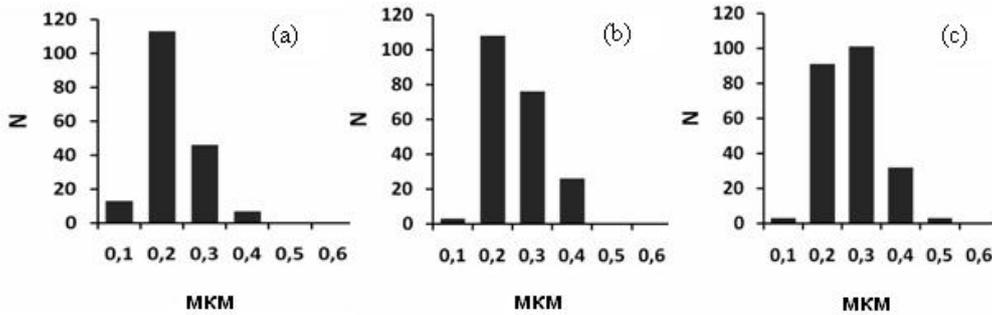


Рис. 3. Распределение зерен и фрагментов в никеле для различных состояний: (а) после КГД, (b) после КГД и отжига при 150°C в течение 25 мин, (с) после КГД и УЗО с амплитудой 40 МПа.

измерения микротвердости по Виккерсу на установке Axiovert-100A с приставкой МНТ-10 при нагрузке индентора 10 гр. и времени выдержки 10 с.

Таблица 1

Данные рентгеноструктурного анализа для различных состояний УМЗ никеля.

Состояние	Параметр решетки, a , Å	Микродеформации, $\sqrt{\langle e^2 \rangle}$, %
Эталон	3.5244±0.0004	-
КГД	3.5243±0.0009	0.065±0.001
КГД+отжиг 150°C	3.5242±0.0010	0.054±0.002
КГД+УЗО 40 МПа	3.5241±0.0008	0.058±0.002

3. Результаты эксперимента

Электронно-микроскопические исследования показывают, что в результате интенсивной пластической деформации методом КГД в образцах никеля была сформирована НК структура со средним размером структурных элементов 180 нм и высокой плотностью дислокаций (рис. 2,а). Диффузный контраст на границах зерен и большое число контуров экстинкции свидетельствуют о неравновесном состоянии границ зерен и высоких внутренних напряжениях в образцах [2]. На рис. 2,б,с показаны микроструктуры УМЗ никеля после отжига при 150°C и УЗО, соответственно. Средний размер структурных элементов в обоих состояниях составил 200 нм, то есть незначительно увеличился по сравнению с состоянием после КГД. Видно, что в обоих случаях в микроструктуре отсутствует диффузный контраст, углы на тройных стыках становятся близки к равновесному значению 120°. Это свидетельствует о том, что в как результате отжига, так и в результате УЗО произошла релаксация структуры. Сравнение распределений зерен и фрагментов по размерам для трех состояний - после КГД, последующего отжига и УЗО, - показывают, что в двух последних состояниях число мелких зерен и фрагментов уменьшается. Это коррелирует с результатами компьютерного моделирования [13], со-

гласно которым в результате отжига и УЗО происходит снижение доли малоугловых границ зерен и уменьшение числа малоугловых мелких фрагментов. Эффект релаксации структуры подтверждается и данными рентгеноструктурного анализа, которые приведены в таблице 1. Степень среднеквадратической микродеформации в материале снижается и после отжига, и после УЗО.

Результаты измерения контактной разности потенциалов представлены на графике зависимости тока задержки от задерживающего потенциала (рис. 4). Нулевое значение потенциала выбрано условно. Разницу величины работы выхода электрона для образцов определяли по относительному смещению кривых по оси потенциалов при токе, равном половине от максимального значения. Наименьшее значение работы выхода имеет образец, подвергнутый интенсивной пластической деформации (рис. 4, кривая 1). Работа выхода eU_r для него на 0,6 эВ ниже, чем для крупнокристаллического образца, полученного с помощью отжига при температуре 700°C со средним размером зерен 10 мкм (кривая 4) [17]. Релаксация структуры путем отжига при температуре 150°C и УЗО приводит практически к одинаковому смещению кривой 1 в сторону больших потенциалов (кривые 2 и 3 на рис. 4). В обоих случаях работа выхода электрона

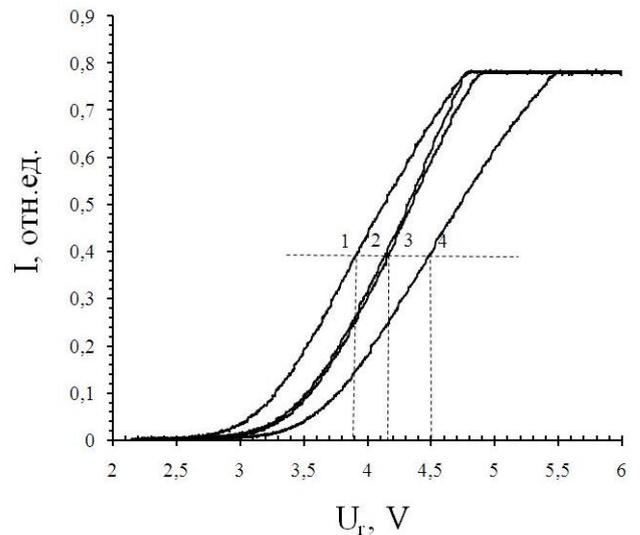


Рис. 4. Зависимость тока задержки от задерживающего потенциала для образцов никеля в различных состояниях: 1 – после КГД, 2 – после отжига при 150°C в течение 25 минут, 3 – после КГД и УЗО с амплитудой 40 МПа, 4 – после отжига при 700°C (КК состояние).

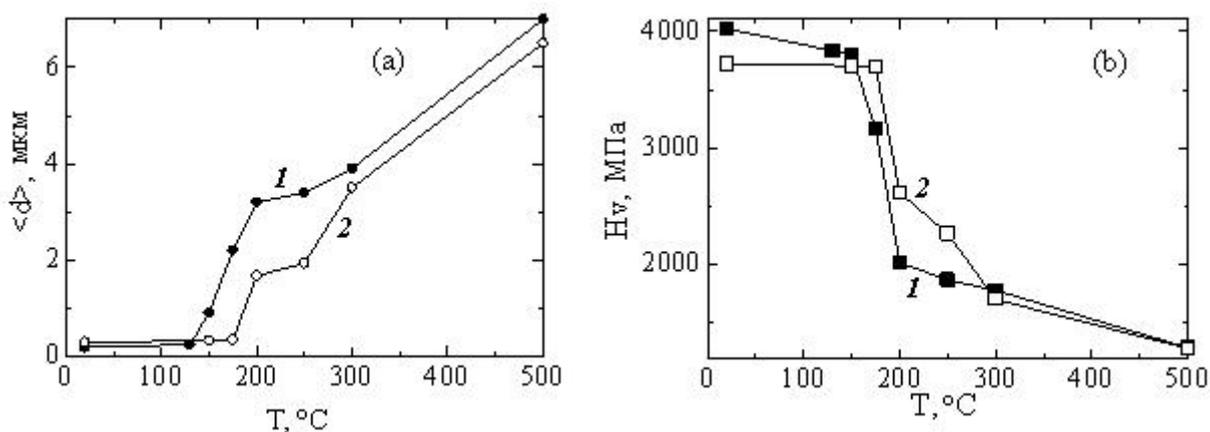


Рис. 5. Зависимость среднего размера зерен (а) и микротвердости (б) от температуры отжига для состояний 1 – после КГД, 2 – после КГД и УЗО с амплитудой 40 МПа. Время отжига – 2 часа.

увеличилась на 0,26 эВ. Учитывая чувствительность данной физической характеристики к структурным изменениям, можно сказать, что результаты измерений работы выхода электрона свидетельствуют о том, что УЗО с амплитудой напряжения 40 МПа способствует релаксации структуры никеля после КГД в такой же степени, как и отжиг при температуре 150 $^{\circ}\text{C}$ в течение 25 мин. Это также подтверждается практически одинаковыми средними значениями микротвердости образцов в обоих случаях (таблица 2).

Таблица 2

Значения микротвердости УМЗ никеля в различных состояниях.

Состояние	H_v , МПа
КГД	4020 \pm 145
КГД+ отжиг 150 $^{\circ}\text{C}$	3795 \pm 120
КГД+УЗО 40 МПа	3720 \pm 150

4. Исследование термической стабильности

Проводились отжиги образцов никеля при различных температурах для двух состояний: после КГД и после УЗО в течение 2 часов. Исследовалась микроструктура и микротвердость никеля в каждом полученном состоянии. Электронно-микроскопические исследования показывают, что в УМЗ никеле после КГД рост зерен начинается при температуре 150 $^{\circ}\text{C}$ (этого не происходило при меньшем времени выдержки). При этом происходит формирование бимодальной структуры: в мелкозернистой матрицей со средним размером зерен 300 нм отдельные зерна достигают размера до 1,5 мкм. Механизмы так называемого аномального роста, который наблюдается в данном случае, описаны в [19]. При температуре 175 $^{\circ}\text{C}$ формируется однородная структура с крупными относительно деформированного состояния зернами со средним размером 2,2 мкм. Увеличение температуры отжига ведет к дальнейшей рекристаллизации.

В никеле, подвергнутом УЗО после деформации, отжиг при температуре 150 $^{\circ}\text{C}$ не приводит к заметному росту зерен. При увеличении температуры отжига до

175 $^{\circ}\text{C}$ рост зерен по-прежнему не наблюдается. Стадия аномального роста, наблюдавшаяся для деформированного никеля при температуре 150 $^{\circ}\text{C}$, для никеля, подвергнутого УЗО, начинается только при температуре 200 $^{\circ}\text{C}$. Дальнейшее повышение температуры отжига приводит к росту зерен, характерному для процесса рекристаллизации. Таким образом, УЗО способствует отодвиганию начала аномального роста на 50 $^{\circ}\text{C}$ в сторону увеличения температуры.

На рис. 5,а,б показаны зависимости среднего размера зерен и микротвердости от температуры отжига. Эти зависимости являются типичными и получены в ряде работ по изучению термостабильности никеля [7,20]. Отличием кривых 1 и 2 на рис. 5,а,б является то, что начало роста зерен и скачкообразное уменьшение микротвердости после УЗО отодвигается в сторону больших температур по сравнению с никелем, подвергнутым КГД.

По результатам электронно-микроскопических исследований и измерения микротвердости видно, что УЗО никеля, подвергнутого КГД, способствует небольшому повышению его термостабильности. Это является следствием релаксации структуры.

Механизмы релаксации структуры путем ультразвука отличаются от тех, что действуют при отжиге. Подробно эти механизмы описаны с помощью методов компьютерного моделирования в работах [12-15,21].

5. Заключение

Экспериментально подтверждено релаксационное воздействие ультразвука низкой амплитуды на неравновесную структуру УМЗ никеля, полученного ИПД кручением. Показано, что степень релаксации структуры после УЗО с амплитудой напряжения 40 МПа соответствует состоянию после отжига УМЗ никеля при температуре 150 $^{\circ}\text{C}$ в течение 25 мин. Показано повышение термостабильности никеля, подвергнутого ИПД кручением, в результате УЗО.

Литература

1. R.R. Mulyukov. Rossiyskie nanotehnologii 2, 38 (2007) (in Russian) [Мулюков Р.Р. Российские нанотехнологии 2,

- 38 (2007)].
2. A.A. Nazarov, R.R. Mulyukov. Nanostructured Materials. In: Nanoscience, Engineering and Technology Handbook. Eds. Lyshevski S., Brenner D., Iafate J. Goddard W. Boca Raton: CRC Press. 22-1 (2002).
 3. A.P. Zhilyaev, T.G. Langdon. Prog. Mater. Sci. **53**, 893 (2008).
 4. R.Z. Valiev, I.V. Aleksandrov. Bulk nanostructured metal materials. Moscow: Akademkniga (2007) 398 p. (in Russian) [Валиев Р.З., Александров И.В. Объемные наноструктурные металлические материалы. ИКЦ М: Академкнига, (2007) 398 с].
 5. V.N. Chuvildeev. Neravnovesnie granitsi zeren v metallah. Teoriya i prilogeniya. Moscow: Fizmatlit (2004) 304 p. (in Russian) [Чувильдеев В.Н. Неравновесные границы зерен в металлах. Теория и приложения. М: Физматлит (2004) 304 с].
 6. Yu.R. Kolobov, O.A. Kashin, E.F. Dudarev, G.P. Grabovetskaya, G.P. Pochivalova, V.A. Klimenov, N.V. Girsova, E.E. Sagymbaev. Russian Physics Journal **43**(9), 754 (2000). [Колобов Ю.Р., Кашин О.А., Дударев Е.Ф. и др. Изв. вузов. Физика. **9**, 45 (2000)].
 7. V.O. Abramov, O.V. Abramov, F. Sommer, O.M. Gradov, O.M. Smirnov. Ultrasonics. **36**, 1013 (1998).
 8. V.A. Anchev, Yu.A. Skakov. Izvestiya Vuzov. Chernaya Metallurgiya **11**, 132 (1974) (in Russian) [Анчев В.А., Скаков Ю.А. Изв. вузов. Черная металлургия. **11**, 132 (1974)].
 9. A.V. Panin, M.S. Kazachenok, Yu.I. Pochivalov, Yu.F. Ivanov, A.A. Panina. Russian Physics Journal **52**(1), 85 (2009) [А.В. Панин, М.С. Казаченок, Ю.И. Почивалов, Ю.Ф. Иванов, А.А. Панина. Изв. вузов. Физика. **1**, 74 (2009)].
 10. V.E. Panin. The physics of metals and metallography **98**(1), 109 (2004) (in Russian) [Панин А.В. ФММ. **98**(1), 109 (2004)].
 11. V.A. Klimenov, Yu.F. Ivanov, O.B. Perevalov et al. Physics and Chemistry of Materials Treatment **1**, 90 (2001) (in Russian) [Клименов В.А., Иванов Ю.Ф., Перевалова О.Б. и др. ФХОМ. **1**, 90 (2001)].
 12. A.A. Nazarova, S.V. Dmitriev, Yu.A. Baimova, R.R. Mulyukov, A.A. Nazarov. The Physics of Metals and Metallography **111**(5), 513 (2011) [А.А. Назарова, С.В. Дмитриев, Ю.А. Баймова, Р.Р. Мулюков, А.А. Назаров. ФММ. **111**(5), 536 (2011)].
 13. A.A. Nazarova, S.V. Dmitriev, A.I. Pshenichnyuk, R.R. Mulyukov. Phys. Solid State. **52**(12), 2490 (2010). [Назарова А.А., Дмитриев С.В., Пшеничнюк А.И., Мулюков Р.Р. ФТТ. **52**(12), 2330 (2010)].
 14. S.V. Dmitriev, A.I. Pshenichnyuk, A.M. Iskandarov, A.A. Nazarova. Modelling Simul. Mater. Sci. Eng. **18**, 025012, (2010).
 15. S.V. Dmitriev, A.A. Nazarova, A.I. Pshenichnyuk, A.M. Iskandarov. Discrete and Continuous Dynamical Systems. Series S. **4**(5), 1079 (2011).
 16. Yu.R. Kolobov, O.A. Kashin, E.F. Dudarev, G.P. Grabovetskaya, G.P. Pochivalova, V.A. Klimenov, N.V. Girsova, E.E. Sagymbaev. Russian Physics Journal **43**(9), 754 (2000) [Колобов Ю.Р., Кашин О.А., Дударев Е.Ф., Грабовецкая Г.П., Почивалова Г.П., Клименов В.А., Гирсова Н.В., Сагымбаев Е.Е. Известия вузов. Физика. **9**, 45 (2000)].
 17. R.Kh. Khisamov, I.M. Safarov, R.R. Mulyukov, Yu.M. Yumaguzin, L.R. Zubairov, K.S. Nazarov. Technical Physics **56** (11), 1661 (2011). [Хисамов Р.Х., Сафаров И.М., Мулюков Р.Р. и др. ЖТФ. **81**(11), 122 (2011)].
 18. R.R. Mulyukov, Yu.M. Yumaguzin. Doklady Physics **49**(12), 730 (2004). [Мулюков Р.Р., Юмагузин Ю.М. ДАН. **399**(6), 730 (2004)].
 19. V.N. Chuvildeev, V.I. Kopilov, A.V. Nokhrin, I.M. Makarov, L.M. Malashenko, V.A. Kukarenko. The Physics of Metals and Metallography **96**(5), 51 (2003) (in Russian) [В.Н. Чувильдеев, В.И. Копылов, А.В. Нохрин, И.М. Макаров, Л.М. Малашенко, В.А. Кукаренко. ФММ **96**(5), 51 (2003)].
 20. A.V. Korznikov, G.F. Korznikova, M.M. Mishlyaev, R.Z. Valiev, D. Salimonenko, O. Dimitrov. The Physics of Metals and Metallography **84**(4), 133 (1997) (in Russian). [А.В. Корзников, Г.Ф. Корзникова, М.М. Мышляев, Р.З. Валиев, Д. Салимоненко, О. Димитров. ФММ **84**(4), 133 (1997)].
 21. A.A. Nazarov, Sh.Kh. Khannanov. Physics and Chemistry of Materials Treatment **4**, 109 (1986) (in Russian) [А.А. Назаров, Ш.Х. Ханнанов. ФХОМ **4**, 109 (1986)].