

I. E. Volokitina<sup>1</sup>, G. G. Kurapov<sup>2</sup><sup>1</sup>Karaganda state industrial university, Temirtau, Kazakhstan,<sup>2</sup>K. I. Satpayev Kazakh national research technical university, Almaty, Kazakhstan.

E-mail: irinka.vav@mail.ru, kurapov1940@mail.ru

## STUDY OF THE CRYOGENIC COOLING EFFECT ON THE COPPER MICROSTRUCTURAL EVOLUTION DURING ECAP

**Abstract.** This article describes the study of the cryogenic cooling effect on the copper microstructural evolution during equal channel angular extrusion. The data for investigation was the M1 commercial copper of square section 15×15×70 mm that was subjected to the equal channel angular extrusion in a conventional echelon matrix, with angle of the channel junction of 125° and in an echelon matrix with the same angle of the channel junction but with an intermediate and a quenching chamber equipped with a system for circulating nitrogen, which are located after the output matrix channel. The investigation has revealed that the microstructure of copper after extrusion in the proposed equal-channel echelon matrix design that provides cryogenic cooling of the workpiece, is more fine-grained, and higher values of microhardness of copper alloy are provided. It has been established that the main process of the structure refinement, regardless of the mechanism of yield ability (ductility), occurs at the time of yielding of metal, and subsequently there is fixation of the formed structure.

**Keywords:** microstructure, ECA-pressing, copper, cryogenic cooling, microhardness.

УДК 621.771

И. Е. Волокитина<sup>1</sup>, Г. Г. Курапов<sup>2</sup><sup>1</sup>Карагандинский государственный индустриальный университет, Темиртау, Казахстан,<sup>2</sup>Казахский национальный исследовательский технический университет им. К. И. Сатпаева,  
Алматы, Казахстан

## ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ КРИОГЕННОГО ОХЛАЖДЕНИЯ ПРИ РКУП НА ЭВОЛЮЦИЮ МИКРОСТРУКТУРЫ МЕДИ

**Аннотация.** Проведено исследование влияния криогенного охлаждения при равноканальном угловом прессовании на эволюцию микроструктуры меди. Материалом исследования являлась техническая медь марки М1 квадратного сечения 15×15×70 мм, которую подвергали РКУП в обычной ступенчатой матрице углом стыка каналов 125° и в ступенчатой матрице с таким же углом стыка каналов, но с промежуточной и закалочной камерой, оснащенной системой для циркуляции азота, располагающихся после выходного канала матрицы. В результате исследования выявлено, что микроструктура меди после прессования в предлагаемой конструкции равноканальной ступенчатой матрицы, обеспечивающей криогенное охлаждение заготовки, получается более мелкозернистой, а также обеспечиваются более высокие значения микротвердости медного сплава. Установлено, что основной процесс измельчения структуры, вне зависимости от механизма пластичности, происходит в момент протекания пластического течения металла, а в дальнейшем происходит закрепление образовавшейся структуры.

**Ключевые слова:** микроструктура; РКУ-прессование, медь, криогенное охлаждение, микротвердость.

**Введение.** Одной из основных задач материаловедения и машиностроения является повышение физико-механических свойств изделий и полуфабрикатов. В последние годы такое повышение свойств основано на получении субмикроструктурной и нанокристаллической

структур в металлических материалах, которая обеспечивает в них уникальное сочетание технологических и служебных свойств [1-3]. Наиболее простым и эффективным способом получения материалов с ультрамелкозернистой структурой является термомеханическая обработка, основанная на сочетании больших пластических деформаций и отжигов [4-6]. Варьируя режимы термомеханической обработки, можно получать структуры с различными параметрами в результате развития тех или иных рекристаллизационных процессов, что позволяет за счет микроструктурного дизайна управлять свойствами материалов в широких пределах [7, 8]. Такой подход к управлению структурой и механическими свойствами особенно актуален для чистых металлов и сплавов, которые не испытывают фазовых превращений при операциях термической обработки, и, соответственно, различные структурные состояния в них могут быть получены только за счет больших пластических деформаций и последующих отжигов. К таким материалам относится медь.

В последние годы были проведены многочисленные исследования, направленные на увеличение прочностных характеристик меди путем получения наноразмерных кристаллитов с помощью интенсивной пластической деформации [9-12]. Большинство работ по получению таких материалов проведено с использованием метода равноканального углового прессования (РКУП) [13-16]. Метод РКУП не позволяет достичь экстремальных степеней деформации, как, например, при кручении под квазигидростатическим давлением [17, 18], но его несомненным преимуществом является возможность получения объемных заготовок. Это преимущество позволяет изучать не только структуру, сформированную при интенсивной пластической деформации, но и механические свойства материалов при растяжении и сжатии.

Несмотря на все свои преимущества, процесс РКУП до сих пор не реализован в промышленных масштабах, и его исследование носит сугубо лабораторный характер. Также данный метод достаточно сложен технологически и до настоящего времени имеет очень ограниченное применение в прикладных технологических задачах. Поэтому поиски путей получения высокопрочных металлических материалов с применением относительно простых технологий является актуальной задачей данной работы.

Таким образом, актуальность темы работы связана с возможностью значительного расширения области применения промышленных технически чистых металлов за счет создания передовых технологических процессов получения ультрамелкозернистых полуфабрикатов и изделий с качественно новым уровнем физико-механических свойств.

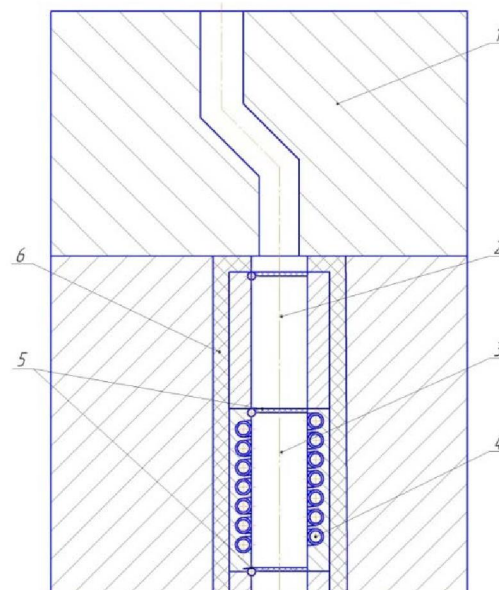
**Материал и методика исследования.** Материалом исследования является техническая медь марки М1. Образцы квадратного сечения 15×15×70 мм подвергали РКУП в обычной ступенчатой матрице [19] с углом стыка каналов 125° и в ступенчатой матрице с таким же углом стыка каналов, но с промежуточной и закалочной камерой, оснащенной системой для циркуляции азота, располагающихся после выходного канала матрицы (рисунок 1). В обоих случаях равноканальное угловое прессование осуществлялось по маршруту Вс с кантовкой заготовки на 90° вокруг продольной оси [20]. Трение между инструментом и заготовкой снижалось применением пальмового масла в качестве лубриканта.

На первой стадии экспериментов изучали влияние криогенного охлаждения при циклическом деформировании заготовок в предлагаемой конструкции равноканальной ступенчатой матрицы, как уже отмечалось выше, снабженной промежуточной и закалочной камерой с системой для циркуляции азота. Прессование в предлагаемой конструкции равноканальной ступенчатой матрицы осуществляется следующим образом. Заготовка задается в приемный канал матрицы, которая при помощи пуансона проталкивается последовательно в наклонный промежуточный, а затем в выходной канал. После того, как пуансон полностью продавит заготовку в приемном канале, в матрицу задается следующая заготовка, которая передним концом выталкивает предыдущую заготовку из матрицы в промежуточную камеру, которая снабжена двумя запорными элементами, что позволяет реализовать процесс двухзонной загрузки. После чего заготовка попадает в закалочную камеру, где происходит интенсивное охлаждение заготовки и непосредственно закалка. Извлечение заготовки осуществляется при открывании нижней запорной крышки.

Вторую партию медных заготовок деформировали в обычной равноканальной ступенчатой матрице при температуре 25°C. В обоих случаях количество проходов через каналы равноканальной ступенчатой матрицы составляло 4.

Рисунок 1 –

Равноканальная ступенчатая матрица с охлаждением:  
 1 – матрица, имеющая три канала одинакового поперечного сечения, два из которых (входной и выходной) параллельны друг другу, а средний канал расположен под углом к входному и выходному каналам, 2 – промежуточная камера, 3 – закалочная камера, 4 – система циркуляции азота, 5 – запорные элементы, 6 – термоизоляционный материал



Подготовка шлифов для металлографических исследований осуществлялась по стандартной методике. Обработанные образцы были изучены, используя оптический микроскоп Leica, снабженный микротвердомером. Все образцы были исследованы в средней плоскости образца, чтобы избежать влияния периферийных областей. Получаемые образцы рассматривались в двух сечениях: поперечном и продольном.

**Результаты исследований.** На рисунке 2а показана оптическая фотография микроструктуры исходной меди (катанный пруток), как видно из фотографии, структура деформированной меди имеет большое количество двойников. В исходном состоянии средний размер зерна меди составлял 120 мкм; микротвердость – 580 МПа.

Для оценки эффективности РКУП и воздействия криогенного охлаждения, необходимо сравнить микроструктуру медных сплавов до и после деформирования. Фотографии микроструктуры, полученные при изучении сплава М1 после 4-х циклов прессования при различных условиях охлаждения, представлены на рисунке 2б,в.

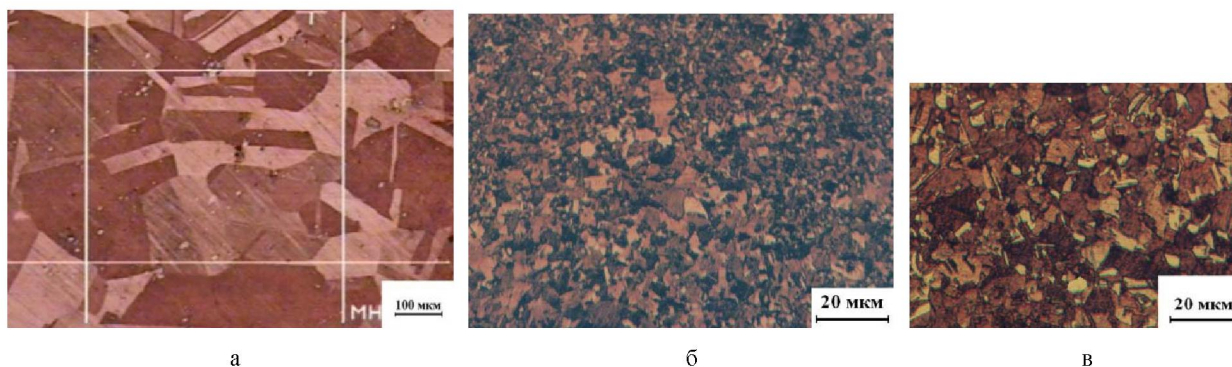


Рисунок 2 – Оптические фотографии микроструктуры меди после 4 циклов РКУП в ступенчатой матрице:  
 а – исходная структура, б – после РКУП азотом; в – после РКУП без охлаждения азотом

Результаты определения микротвердости по Виккерсу и диаметра зерна для меди М1 до и после 4-х циклов РКУП

Вид обработки	Микротвердость, МПа	Средний диаметр зерна, мкм
Исходная	580	120
РКУП	1010	15
РКУП+азот	1250	6

На оптическом микроскопе Leica, оборудованном микротвердомером, были произведены испытания на определение микротвердости (рисунок 4). Результаты определения микротвердости и диаметра зерна медного сплава М1 до и после РКУП представлены в таблице.

**Обсуждение полученных результатов.** Металлографический анализ меди показал, что в результате проведения РКУП в ступенчатой матрице в обоих случаях происходит заметное уменьшение размеров зерен после каждого цикла деформирования и уже после четвертого цикла деформирования структура медного сплава представляла собой частично ячеистую, частично полигонизованную структуру.

Результаты исследования эволюции микроструктуры и микротвердости по Виккерсу медного сплава М1 в ходе РКУП при различных условиях охлаждения показали, что:

- при деформировании меди в известной конструкции равноканальной ступенчатой матрицы микротвердость после 4 циклов деформирования составила 1010 МПа, а средний диаметр зерна 35 мкм;

- при деформировании медного сплава в предлагаемой конструкции равноканальной ступенчатой матрицы для прессования, обеспечивающем криогенное охлаждение заготовки, микротвердость после 4 циклов деформирования составила 1250 МПа, а средний диаметр зерна 6 мкм.

То есть из этих данных мы видим, что микроструктура меди после прессования в предлагаемой конструкции равноканальной ступенчатой матрицы, обеспечивающей криогенное охлаждение заготовки, структура получается более мелкозернистой, а так же обеспечивается более высокие значения микротвердости медного сплава.

**Выводы.** В целом проведенные исследования показали, что основной процесс измельчения структуры, вне зависимости от механизма пластичности, происходит в момент протекания пластического течения металла, а в дальнейшем происходит закрепление образовавшейся структуры. Сам факт уменьшения конечного зерна в случае попадания образца после обработки в условия быстрого охлаждения (закалка жидким азотом) свидетельствует о том, что процесс пластичности осуществляется через физико-химическое превращение металла с перекристаллизацией.

#### ЛИТЕРАТУРА

- [1] Degtyarev M.V., Chashchukhina T.I., Voronova L.M., Patselov A.M., Pilyugin V.P. (2007) Influence of the relaxation processes on the structure formation in pure metals and alloys under high-pressure torsion, *Acta Mater*, 55:6039–6050. DOI: 10.1016/j.actamat.2007.04.017
- [2] Ma Z.Y., Liu F.C., Mishra R.S. (2010) Superplastic deformation mechanism of an ultrafine-grained aluminum alloy produced by friction stir processing, *Acta Materialia*, 58:4693–4704
- [3] Chichkan A.S., Chesnokov V.V., Gerasimov E.Yu., Parmon V.N. (2013) Production of nanoporous ceramic membranes using carbon nanomaterials, *Doklady Physical Chemistry*, 2:135–137. DOI: 10.1134/S0012501613060031
- [4] Skryabina N.E., Aptukov V.N., Romanov P.V., Fruchart D. (2014) Impact of equal-channel angular pressing on mechanical behavior and microstructure of magnesium alloys, *PNRPU Mechanics Bulletin*, 3:113-128. DOI: 10.15593/perm.mech/2014.3.07. (In Russian)
- [5] Kurapov G., Orlova E., Volokitina I., Turdaliev A. (2016) Plasticity as a physical-chemical process of deformation of crystalline solids, *Journal of Chemical Technology and Metallurgy*, 51:451–457
- [6] Volodin A.M., Zaikovskii V.I., Kenzhin R.M., Bedilo A.F., Mishakov I.V., Vedyagin A.A. (2017) Synthesis of Nanocrystalline Calcium Aluminate C12A7 under Carbon Nanoreactor Conditions, *Materials Letters*, 189:210-212. DOI: 10.1016/j.matlet.2016.11.112
- [7] Astafurova E.G., Zakharova G. G., Naydenkin E.V. (2010) Effect of equal channel angular pressing on the structure and mechanical properties of low carbon steel 10Г2ФТ, *FMM*, 3:275-284. (In Russian).
- [8] Naizabekov A.B., Lezhnev S.N., Kurapov G.G., Volokitina I.E., Orlova E.P. (2016) Bulletin of National academy of sciences of the Republic of Kazakhstan [Vestnik Nacional'noj akademii nauk Respubliki Kazakhstan] 2:95-102. (In Russian)
- [9] Lezhnev S., Volokitina I., Koinov T. (2014), Research of influence equal channel angular pressing on the microstructure of copper, *Journal of Chemical Technology and Metallurgy*, 49:621-630
- [10] Lezhnev S., Nayzabekov A., Volokitina A., Volokitina I. (2014) New combined process "pressing-drawing" and impact on properties of deformable aluminum wire, *Procedia Engineering*, 81: 1505 – 1510.
- [11] Mashekova A. S. (2016) Bulletin of National academy of sciences of the Republic of Kazakhstan [Vestnik Nacional'noj akademii nauk Respubliki Kazakhstan] 5:107-121. (In Russian)
- [12] Qu S., An X.H., Yang H.J., Huang C.X., Yang G., Zang Q.S., Wang Z.G., Wu S.D., Zhang Z.F. (2009) Microstructural Evolution and Mechanical Properties of Cu-Al Alloys Subjected to Equal Channel Angular Pressing, *Acta Materialia*, 5: 1586-1601.
- [13] Murashkin M.Yu., Sabirov I., Kazykhanov V.U. (2013) Enhanced mechanical properties and electrical conductivity in ultrafine-grained Al alloy processed via ECAP-PC, *Journal of Materials Science*, 48: 4501-4509.



- [14] Kyung-Tae Park, Chong Soo Lee, Dong Hyuk Shin. Strain hardenability of ultrafine grained low carbon steels processed by ECAP, *Rev.Adv.Mater.Sci.*, 10:133-137
- [15] Kawasakia M., Horitab Z., Langdona T. G. (2009) Microstructural Evolution in High Purity Aluminum Processed by ECAP, *Materials Science and Engineering A*, 524:143-150.
- [16] Fakhretdinova E.I., Raab G.I., Ganiev M.M. (2015) Development of force parameters model for a new severe plastic deformation technique – Multi-ECAP-Conform, *Applied Mechanics and Materials*, 698:386-390.
- [17] Raab G., Lapovok R. (2006) Modelling of Stress-Strain Distribution in ECAE by analytical-experimental method, *Ultrafine Grained Materials IV TMS Meeting*, 1:189-194.
- [18] Abdulazeez T. Lawal, (2016) Synthesis and utilization of carbon nanotubes for fabrication of electrochemical biosensors, *Materials Research*, 73, 308–350, doi:10.1016/j.materresbull.2015.08.037.
- [19] Patent RF № 2181314. Ustroystvo dlya obrabotki metallov davleniyem. Raab G.I., Kulyasov G.V., Polozovskiy V.A., Valiyev R.Z., 2002.(In Russian)
- [20] Naizabekov A.B., Lezhnev S.N., Volokitina I.E. (2015) Change in copper microstructure and mechanical properties with deformation in an equal channel stepped die, *Metal Science and Heat Treatment*, 57:5-6. DOI:10.1007/s11041-015-9870-x

## REFERENCES

- [1] Degtyarev M.V., Chashchukhina T.I., Voronova L.M., Patselov A.M., Pilyugin V.P. (2007) Influence of the relaxation processes on the structure formation in pure metals and alloys under high-pressure torsion, *Acta Mater*, 55:6039–6050. DOI: 10.1016/j.actamat.2007.04.017
- [2] Ma Z.Y., Liu F.C., Mishra R.S. (2010) Superplastic deformation mechanism of an ultrafine-grained aluminum alloy produced by friction stir processing, *Acta Materialia*, 58:4693–4704
- [3] Chichkan A.S., Chesnokov V.V., Gerasimov E.Yu., Parmon V.N. (2013) Production of nanoporous ceramic membranes using carbon nanomaterials, *Doklady Physical Chemistry*, 2:135–137. DOI: 10.1134/S0012501613060031
- [4] Skryabina N.E., Aptukov V.N., Romanov P.V., Fruchart D. (2014) Impact of equal-channel angular pressing on mechanical behavior and microstructure of magnesium alloys, *PNRPU Mechanics Bulletin*, 3:113-128. DOI: 10.15593/perm.mech/2014.3.07. (In Russian)
- [5] Kurapov G., Orlova E., Volokitina I., Turdaliev A. (2016) Plasticity as a physical-chemical process of deformation of crystalline solids, *Journal of Chemical Technology and Metallurgy*, 51:451-457
- [6] Volodin A.M., Zaikovskii V.I., Kenzhin R.M., Bedilo A.F., Mishakov I.V., Vedyagin A.A. (2017) Synthesis of Nanocrystalline Calcium Aluminate C12A7 under Carbon Nanoreactor Conditions, *Materials Letters*, 189:210-212. DOI: 10.1016/j.matlet.2016.11.112
- [7] Astafurova E.G., Zakharova G. G., Naydenkin E.V. (2010) Effect of equal channel angular pressing on the structure and mechanical properties of low carbon steel 10Г2ФТ, *FMM*, 3:275-284. (In Russian).
- [8] Naizabekov A.B., Lezhnev S.N., Kurapov G.G., Volokitina I.E., Orlova E.P. (2016) Bulletin of National academy of sciences of the Republic of Kazakhstan [Vestnik Nacional'noj akademii nauk Respubliki Kazahstan] 2:95-102. (In Russian)
- [9] Lezhnev S., Volokitina I., Koinov T. (2014), Research of influence equal channel angular pressing on the microstructure of copper, *Journal of Chemical Technology and Metallurgy*, 49:621-630
- [10] Lezhnev S., Nayzabekov A., Volokitin A., Volokitina I. (2014) New combined process "pressing-drawing" and impact on properties of deformable aluminum wire, *Procedia Engineering*, 81: 1505 – 1510.
- [11] Mashekova A. S. (2016) Bulletin of National academy of sciences of the Republic of Kazakhstan [Vestnik Nacional'noj akademii nauk Respubliki Kazahstan] 5:107-121. (In Russian)
- [12] Qu S., An X.H., Yang H.J., Huang C.X., Yang G., Zang Q.S., Wang Z.G., Wu S.D., Zhang Z.F. (2009) Microstructural Evolution and Mechanical Properties of Cu-Al Alloys Subjected to Equal Channel Angular Pressing, *Acta Materialia*, 5: 1586-1601.
- [13] Murashkin M.Yu., Sabirov I., Kazykhanov V.U. (2013) Enhanced mechanical properties and electrical conductivity in ultrafine-grained Al alloy processed via ECAP-PC, *Journal of Materials Science*, 48: 4501-4509.
- [14] Kyung-Tae Park, Chong Soo Lee, Dong Hyuk Shin. Strain hardenability of ultrafine grained low carbon steels processed by ECAP, *Rev.Adv.Mater.Sci.*, 10:133-137
- [15] Kawasakia M., Horitab Z., Langdona T. G. (2009) Microstructural Evolution in High Purity Aluminum Processed by ECAP, *Materials Science and Engineering A*, 524:143-150.
- [16] Fakhretdinova E.I., Raab G.I., Ganiev M.M. (2015) Development of force parameters model for a new severe plastic deformation technique – Multi-ECAP-Conform, *Applied Mechanics and Materials*, 698:386-390.
- [17] Raab G., Lapovok R. (2006) Modelling of Stress-Strain Distribution in ECAE by analytical-experimental method, *Ultrafine Grained Materials IV TMS Meeting*, 1:189-194.
- [18] Abdulazeez T. Lawal, (2016) Synthesis and utilization of carbon nanotubes for fabrication of electrochemical biosensors, *Materials Research*, 73, 308–350, doi:10.1016/j.materresbull.2015.08.037.
- [19] Patent RF № 2181314. Ustroystvo dlya obrabotki metallov davleniyem. Raab G.I., Kulyasov G.V., Polozovskiy V.A., Valiyev R.Z., 2002.(In Russian)
- [20] Naizabekov A.B., Lezhnev S.N., Volokitina I.E. (2015) Change in copper microstructure and mechanical properties with deformation in an equal channel stepped die, *Metal Science and Heat Treatment*, 57:5-6. DOI:10.1007/s11041-015-9870-x

**И. Е. Волокитина<sup>1</sup>, Г. Г. Курапов<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>Қарағанды мемлекеттік индустриялық университеті, Темиртау, Қазақстан,  
<sup>2</sup>Қ. И. Сәтбаев атындағы Қазақ ұлттық зерттеу техникалық университеті, Алматы, Қазақстан

**МЫС МИКРОҚҰРЫЛЫМНЫҢ ЭВОЛЮЦИЯСЫНА  
ТКББ ШАМАСЫНДА КРИОГЕНДІ САЛҚЫНДАТУ ӘСЕРІН ЗЕРТТЕУ**

**Аннотация.** Берілген мақалада мыстың микроқұрылымының эволюциясына теңканалды бұрышты баспалау кезінде криогенді салқындату әсерді зерттеуі өткізілген. Зерттеудің материалы М1 маркалы техникалық мыстың квадраттық қимасы 15x15x70 мм, кәдімгі сатылы матрицада 125° бұрышы қиылысқан каналда ТКББда ұшырады және сондай бұрышы қиылысқан каналмен сатылы матрицада, бірақ матрицаның шығу каналдан кейін орналасқан азоттың циркуляциясы үшін жүйесімен құралдандырылған аралық және шынықтыру камерасымен ұшырыған. Зерттеу нәтижесінде теңканалды сатылы матрицаның ұсынылатын құрылымда баспалаудан кейін мыстың микроқұрылымы, дайындаманың криогенді салқындату қамтамасыз ететін, ең ұсақ түйіршікті болып алынады, сонымен қатар мыс қорытпасының микроқаттылығының ең жоғарғы мәндері қамтамасыз етіледі. Анықталған құрылымның ұсатуының негізгі процесі, илемділіктің механизмдерімен тығыз байланыста, металдың пластикалық ағуының өту кезінде орнатылған, ал одан әрі пайда болған құрылымның орнықтыруда болады.

**Түйін сөздер:** микроқұрылым, ТКБ-баспалау, мыс, криогенді салқындату, микроқаттылық.

**Сведения об авторах:**

Волокитина И.Е. – докторант PhD, магистр, Карагандинский государственный индустриальный университет, Темиртау, Казахстан, [irinka.vav@mail.ru](mailto:irinka.vav@mail.ru)

Курапов Г.Г. – к.х.н., асс. профессор, Казахский национальный исследовательский технический университет им. К. И. Сатпаева, [kurapov1940@mail.ru](mailto:kurapov1940@mail.ru)