

ВЛИЯНИЕ ИНТЕНСИВНОЙ ПЛАСТИЧЕСКОЙ ДЕФОРМАЦИИ И ОТЖИГА НА ПАРАМЕТРЫ ДИНАМИЧЕСКОЙ РЕЛАКСАЦИИ КОИВЫ-ХАСИГУТИ В НАНОСТРУКТУРНОМ И ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКОМ ЦИРКОНИИ

П.П. Паль-Валь¹⁾, Л.Н. Паль-Валь¹⁾, А.П. Рыбалко²⁾, Е.Н. Ватажук¹⁾

*¹⁾ Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина,
Национальная академия наук Украины, 61103 Харьков, Украина*

*²⁾ Харьковский национальный экономический университет им. С. Кузнеца
61166 Харьков, Украина, E-mail: palval@ilt.kharkov.ua*

В области температур 100-340 К изучены температурные зависимости акустических свойств наноструктурного и поликристаллического циркония. Детально изучено влияние интенсивной пластической деформации и последующего отжига на основные параметры низкотемпературной акустической релаксации Коивы-Хасигути в цирконии. Установлено, что в результате применения интенсивной пластической деформации сила релаксации значительно возрастает, а температура и ширина соответствующего релаксационного пика систематически уменьшаются с уменьшением среднего размера зерна в образцах. При отжиге сила релаксации и температура пика претерпевают частичный возврат к исходным значениям, а ширина релаксационного пика продолжает уменьшаться. Показано, что большинство наблюдавшихся эффектов может быть объяснено изменениями, происходящими в дислокационной подсистеме образцов в процессе интенсивной пластической деформации и отжига. На основе логнормального распределения проведен статистический анализ влияния случайного разброса логарифма времени релаксации $\ln(\tau)$ на основные параметры пика Коивы-Хасигути. Показано, что параметр логнормального распределения β определяет ширину, высоту и асимметрию пика, а также позволяет оценить силу релаксации по высоте пика. В работе приведен алгоритм определения параметра β из экспериментальных данных.

Ключевые слова: интенсивная пластическая деформация, наноструктурные металлы, дислокационные акустические релаксации, низкие температуры, цирконий.

EFFECT OF INTENSIVE PLASTIC DEFORMATION AND ANNEALING ON PARAMETERS OF THE KOIWA-HASIGUTI DYNAMIC RELAXATION IN NANOSTRUCTURED AND POLYCRYSTALLINE ZIRCONIUM

P.P. Pal-Val¹⁾, L.N. Pal-Val¹⁾, A.P. Rybalko²⁾, E.N. Vatazhuk¹⁾

¹⁾ B. I. Verkin Institute of Low Temperature Physics and Engineering, National Academy of Sciences of Ukraine, Kharkov 61103, Ukraine

²⁾ S. Kuznets Kharkov National University of Economics, Kharkov 61166, Ukraine

E-mail: palval@ilt.kharkov.ua

The temperature dependences of acoustic properties of nanostructured and polycrystalline zirconium are investigated in the temperature range 100-340 K. The effect of severe plastic deformation and subsequent annealing on key parameters of the Koiwa-Hasiguti acoustic relaxation in zirconium is studied in detail. It is established that due to intensive plastic deformation the relaxation strength considerably increases and the temperature and width of the corresponding relaxation peak systematically decrease with reduction of the mean grain size in the samples. Annealing leads to a partial recovery of the relaxation strength and the peak temperature back to the initial values in undeformed samples but the width of the relaxation peak shows an additional decrease. The majority of the effects observed can be explained by changes in dislocation subsystems of the samples during intensive plastic deformation and annealing. An influence of a random scatter of the relaxation time on the main parameters of the Koiwa-Hasiguti peak is established using the statistical analysis based on the lognormal distribution. It is shown, that the parameter b of the lognormal distribution determines the width, height and asymmetry of the peak and also allows estimating the relaxation strength from the peak height. An algorithm of retrieving of the parameter b from experimental data is presented.

Keywords: intensive plastic deformation, nanostructured metals, dislocation acoustic relaxations, low temperatures, zirconium.

1. Введение

Изучение физико-механических свойств поликристаллов с сильно фрагментированной структурой с размерами зерен порядка и менее 100 нм представляет значительный интерес, как с точки зрения фундаментальной физики, так и в прикладном отношении. С одной стороны, значительное уменьшение размера зерна приводит к заметным изменениям большинства физических свойств поликристаллов, в частности, в области низких температур. Переход в наноструктурное (НС) состояние изменяет такие важные физические характеристики материалов как модули упругости, пластичность и прочность, температуру Дебая, температуру Кюри, намагниченность насыщения и т.д. С другой стороны, НС металлы имеют более высокие технологические и эксплуатационные характеристики по сравнению с обычными поликристаллическими металлами и потому являются перспективными для практического использования их в качестве конструкционных материалов.

К настоящему времени разработано несколько способов получения сильно фрагментированных материалов. Одним из них является использование методов интенсивной пластической деформации (ИПД), в результате которой в материале формируется наноструктурное или ультрамелкозернистое (УМЗ) состояние. Для достижения больших деформаций применяются равноканальное угловое прессование (РКУП), прокатка, волочение, гидрокструзия, ковка [1, 2]. Методы ИПД позволяют получить практически беспористые объемные образцы, чего не обеспечивают другие методы, например, метод компактирования высокодисперсных порошков. В то же время, приготовленные с помощью ИПД образцы содержат значительное количество деформационных дефектов и, прежде всего, имеют высокую плотность дислокаций. Данное обстоятельство рассматривается как одна из главных причин значительного изменения физико-механических свойств поликристаллов, как при формировании НС состояния, так и при воздействии последующих термических и механических эксплуатационных нагрузок.

Нестабильность НС и УМЗ материалов является серьезным препятствием для широкого применения их в качестве элементов конструкций, в особенности, работающих в экстремальных условиях значительных перепадов нагрузок и температур. В связи с этим, изучение особенностей формирования микроструктуры на различных стадиях приготовления и обработки НС и УМЗ металлов и сплавов представляется важной и актуальной задачей современного материаловедения.

Источником ценной информации о состоянии дислокационной структуры металлов является экспериментальное изучение их динамических упругих и неупругих свойств в широком интервале температур методами акустической спектроскопии, которые обладают высокой чувствительностью к изменению структурных параметров, избирательностью, воспроизводимостью и, кроме того, носят неразрушающий характер измерений. В настоящей работе в интервале температур 100-340 К изучены акустические свойства интенсивно деформированного циркония. Благодаря таким важным свойствам как стойкость к радиационным повреждениям, малое сечение поглощения тепловых нейтронов, высокая коррозионная стойкость, оптимальное для практических применений сочетание пластичности и прочности, цирконий находит широкое применение в ядерной энергетике. Имеются сведения, что фрагментация зеренной структуры с помощью ИПД существенно повышает физико-механические характеристики чистого циркония, особенно, в области низких температур [3], однако эволюция динамических свойств дислокаций на разных стадиях получения и пост-ИПД обработки Zr на сегодняшний день изучена в недостаточной мере.

Целью настоящей работы является сравнительное изучение динамических свойств дислокаций в образцах йодидного циркония, подвергнутых различным схемам ИПД, путем исследования и анализа влияния степени фрагментации их структуры на параметры низкотемпературной дислокационной акустической релаксации Коивы-Хасигути.

2. Образцы и методика эксперимента

Исследовались образцы из поликристаллического йодидного циркония. Исходный материал подвергался двойной электронно-лучевой переплавке. Размер зерен в исходных слитках составлял ~ 1 мм, а интегральная чистота материала характеризовалась величиной относительного остаточного электросопротивления $\rho_{293}/\rho_{4.2} \approx 40$. Фрагментирование зеренной структуры образцов достигалось в ходе интенсивной пластической деформации по нескольким технологическим схемам. Величина ИПД при экструзии, волочении, осадке и обжати характеризовалась значением "истинной" пластической деформации $e = \ln(S_0/S)$, где S_0 и S – начальная и конечная площади поперечного сечения заготовок для образцов. Применение многоступенчатых схем ИПД имело целью, как уменьшение среднего размера зерен \bar{d} , так и достижение более однородного распределения размеров зерен и более высокой степени их равноосности. Однородность распределения характеризовалась коэффициентом вариации $k_v = s/\bar{d}$, где s – среднеквадратичное отклонение от величины \bar{d} . Средний размер зерен и другие характеристики структуры определялись с помощью гистограмм. Подробно процедура приготовления образцов и методы определения их структурных характеристик описаны в [4-6], а основные характеристики исследованных образцов приведены в табл. 1.

Таблица 1

Схемы приготовления и основные характеристики образцов

Образец	\bar{d} , мкм	k_v	Схема приготовления	Пост-ИПД отжиг
Zr-CG [9]	150	0.3	A(1073 К, 4 ч.)	–
Zr-HEA	12	0.85	HE(4.1) + A(853 К, 1 ч.)	–
Zr-HEAD	2	0.71	HE(4.1) + A(853 К, 3 ч.) + D(0.56)	–
Zr-0	0.392	0.66	HE(4.1) + A(853 К, 3 ч.) + D(2.4)	A(425 К, 1 ч.)
Zr-01	0.117	0.35	HE(4.1) + D(2.4)	A(425 К, 1 ч.)
Zr-02RT	0.113	0.32	HE(1.1) + CD(4) + D(2.4)	A(425 К, 1 ч.)
Zr-02CE	0.100	0.28	HE(1.1) + CD(4) + D(1.4) + CE(1.0)	A(425 К, 1 ч.)

A – отжиг (в скобках – температура и продолжительность), HE – «теплая» экструзия при температуре ~ 795 К (в скобках – величина «истинной» пластической деформации), D – волочение при комнатной температуре, CD – циклическая деформация при комнатной температуре, CE – криоэкструзия при 77 К, k_v – коэффициент вариации, характеризующий однородность распределения размеров зерен. В скобках указана величина «истинной» пластической деформации $e = \ln(S_0/S)$, где S_0 и S – начальная и конечная площади поперечного сечения образца.

Акустические измерения проводились методом двойного составного вибратора с пьезоэлектрическим возбуждением [7,8]. В образцах возбуждались продольные стоячие волны на основной частоте $f \sim 73$ кГц, а также на 3-й и 5-й гармониках кварцевого преобразователя (~ 220 и 365 кГц, соответственно). Исследуемые образцы отрезались от полученных прутков с помощью электроискровой резки. В дальнейшем торцы образцов притирались с помощью абразивных материалов до достижения требуемых длины (~ 30 мм), плоскостности и параллельности.

Измерения проводились в интервале температур 100-340 К. Шаг изменения температуры был различным в разных температурных интервалах. Вблизи акустических аномалий шаг изменения температуры был 1-3 К, а в остальном температурном интервале составлял 5 К. Скорость изменения температуры была около 1 К/мин. Измерялись температурные зависимости логарифмического декремента колебаний $\delta(T)$ и резонансной частоты составного вибратора $f(T)$, по которой определялся динамический модуль Юнга $E(T)$ образца. Измерения проводились в амплитудно независимой области при амплитуде ультразвуковой деформации $\varepsilon_0 \sim 1 \cdot 10^{-7}$.

С целью исследования стабильности структуры изученных ультрамелкозернистых образцов они подвергались отжигу в вакууме при температуре 425 К в течение 1 часа.

3. Результаты измерений и их обсуждение

3.1. Физическая природа динамической релаксации

На рис. 1 приведены температурные зависимости логарифмического декремента колебаний $\delta(T)$ для всех исследованных образцов, измеренные на частоте $f \approx 73$ кГц. Для сравнения здесь также показана зависимость $\delta(T)$, полученная ранее для хорошо отожженного крупнозернистого поликристалла циркония на частоте $f \approx 87$ кГц [9].

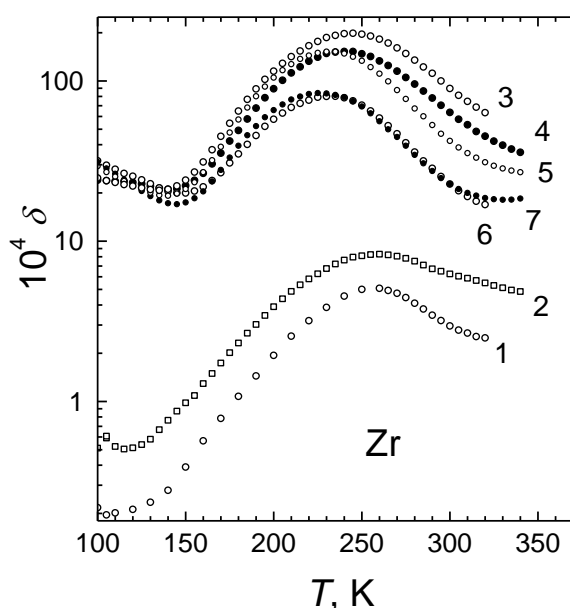


Рис. 1. Температурные зависимости логарифмического декремента колебаний в образцах циркония с различным средним размером зерна \bar{d} : 1 – образец Zr-CG, $\bar{d} = 150$ мкм; 2 – Zr-HEA, $\bar{d} = 12$ мкм; 3 – Zr-HEAD, $\bar{d} = 2$ мкм; 4 – Zr-0, $\bar{d} = 392$ нм; 5 – Zr-01, $\bar{d} = 117$ нм; 6 – Zr-02RT, $\bar{d} = 113$ нм; 7 – Zr-02CE, $\bar{d} = 100$ нм

В отожженных образцах циркония на зависимостях $\delta(T)$ при температуре $T_P = 257$ К ранее был выявлен хорошо выраженный пик внутреннего трения [6, 9, 10]. Было установлено, что увеличение частоты колебаний приводит к смещению пика в область более высоких температур, что свидетельствовало о релаксационной природе данного пика. В простейшем описании термоактивированной динамической релаксации предполагается, что все элементарные релаксаторы одинаковы и имеют единственное характерное время релаксации τ , температурная зависимость которого описывается выражением Аррениуса

$$\tau(T) = \tau_0 \exp(U_0/kT), \quad (1)$$

где U_0 – энергия активации данной релаксации, τ_0 – период попыток, k – константа Больцмана. Для дебаевской релаксации частотно-температурная зависимость релаксационной компоненты логарифмического декремента колебаний имеет вид:

$$\delta_r^D(\omega, T) = \pi \Delta_M^D \frac{\omega\tau(T)}{1 + \omega^2\tau^2(T)}, \quad (2)$$

где $\omega = 2\pi f$ – круговая частота колебаний, $\Delta_M^D = (M_U - M_R)/M_U$ – максимальный дефект модуля (сила релаксации), связанный с релаксацией Дебая, M_U и M_R – нерелаксированный и релаксированный модули упругости, соответственно. Между максимальным значением декремента $\delta_{r\max}^D$ (высотой дебаевского пика) и силой релаксации Δ_M^D существует связь:

$$\Delta_M^D = \frac{2}{\pi} \delta_{r\max}^D, \quad (2a)$$

т.к. из выражения (2) следует, что пик должен наблюдаться при выполнении условия

$$\omega\tau(T_P^D) = 1. \quad (3)$$

По сдвигу пика с изменением частоты колебаний ω могут быть определены активационные параметры данной динамической релаксации – энергия активации U_0 и период попыток τ_0 :

$$U_0 = \frac{k}{1/T_P^D(\omega_2) - 1/T_P^D(\omega_1)} \ln \frac{\omega_1}{\omega_2}, \quad (4)$$

$$\tau_0 = \frac{1}{\omega_{1,2}} \exp\left(-\frac{U_0}{kT_P^D(\omega_{1,2})}\right), \quad (5)$$

где $T_P^D(\omega_1)$ и $T_P^D(\omega_2)$ – температуры локализации пиков на температурных зависимостях, измеренных на частотах ω_1 и ω_2 , соответственно. Определенная таким образом энергия активации оказалась $U_0 \approx 0.32 - 0.37$ эВ, а период попыток $\tau_0 \sim 10^{-13}$ с.

Экспериментально найденные значения активационных параметров данного пика позволяют отнести его к семейству так называемых пиков Коивы-Хасигути (КХ-пиков) [11], обусловленных процессами термически активированных отрывов дислокационных сегментов от локальных дефектов кристаллической структуры (примесных и/или междоузельных атомов и вакансий). Ранее такое предположение

было высказано в работе [9]. В этом случае параметр U_0 имеет смысл энергии связи дислокации с локальным дефектом, а параметр τ_0 – периода колебаний микроскопического элемента дислокационной линии, непосредственно взаимодействующего с дефектом.

Приведенные в [6] значения параметров U_0 и τ_0 следует рассматривать лишь в качестве предварительных оценок, т.к. они были получены для приближения простого дебаевского пика. На самом деле, частотно-температурная зависимость релаксационной компоненты декремента колебаний δ_r^{K-H} вблизи КХ-пиков описывается более сложным выражением, чем дебаевский пик [11]:

$$\delta_r^{K-H} = \Delta_M^{K-H} \frac{2}{(\omega\tau)^{-2} + 4} \left[1 - \exp\left(-\frac{\pi}{\omega\tau}\right) \right], \quad (6)$$

где Δ_M^{K-H} – максимальное значение дефекта модуля, связанного с данной динамической релаксацией:

$$\Delta_M^{K-H} \approx 2.52 \delta_{r\max}^{K-H}, \quad (6a)$$

$\delta_{r\max}^{K-H}$ – высота экспериментально измеренного КХ-пика. Следует отметить значительную величину дефекта модуля Δ_M^{K-H} по сравнению с высотой пика для данной релаксации: если максимальный дефект модуля для релаксации Дебая составляет $2/\pi$ от высоты релаксационного пика, то в случае динамической релаксации Коивы-Хасигути (КХ-релаксации) он в 2.52 раза ее превосходит. В [11] отмечается, что отличие двух обсуждаемых релаксаций состоит в том, что в случае КХ-релаксации поведение релаксаторов (т.е. процесс открепления-закрепления дислокационных сегментов) не является симметричным по отношению к приложению и снятию внешней нагрузки, и динамический отклик твердого тела, содержащего открепляющиеся дислокации, заметно отличается от динамического отклика стандартного линейного тела. Согласно [11], условием наблюдения пика для КХ-релаксации на температурной зависимости декремента колебаний (6) является

$$\omega\tau(T_p^{K-H}) \approx 1.3331, \quad (7)$$

в отличие от условия (3) $\omega\tau(T_p^D) = 1$ для релаксации Дебая. В случае если КХ-релаксация характеризуется единственным временем релаксации, определение величины энергии активации U_0 по частотному сдвигу температуры пика по-прежнему производится в соответствии с выражением (4), но для оценки периода попыток τ_0 выражение (5) должно быть модифицировано:

$$\tau_0 = \frac{1.3331}{\omega_{1,2}} \exp\left(-\frac{U_0}{kT_p^{K-H}(\omega_{1,2})}\right), \quad (8)$$

Таким образом, использование условия (7) вместо условия (3) при определении активационных параметров КХ-пика по его частотному сдвигу не влияет на оценку величины энергии активации U_0 и лишь незначительно увеличивает оценку величины периода попыток τ_0 . Это позволяет нам по-прежнему считать термоактивированное

открепление дислокационных сегментов от локальных центров закрепления основным микроскопическим механизмом данной низкотемпературной релаксации.

3.2. Влияние ИПД на параметры динамической релаксации

В результате интенсивной пластической деформации температурные зависимости декремента колебаний $\delta(T)$ претерпевали ряд существенных изменений:

- 1) значительно возросли фоновые значения декремента колебаний $\delta_{BG}(T)$;
- 2) существенно увеличивалась высота релаксационной составляющей пика

$$\delta_{r \max}^{K-H} = (\delta - \delta_{BG})(T_P^{K-H});$$

- 3) систематически снижалась температура локализации пика T_P^{K-H} ;

4) несколько уменьшалась ширина пика $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H} = 1/T_{0.5}^- - 1/T_{0.5}^+$, определяемая как разность обратных температур, соответствующих полувысоте пика $0.5\delta_{r \max}$ слева и справа от $1/T_P^{K-H}$ (см. ниже раздел 3.3).

Изменение указанных параметров релаксационного пика отражено на рис. 2 а,b,c и в табл. 2, данные для которых получены после вычитания фоновых потерь $\delta_{BG}(T)$. При этом предполагалось, что фоновые потери экспоненциально зависят от температуры [9]:

$$\delta_{BG}(T) = A \exp(-B/kT) + \delta_{BG}(5 \text{ K}), \quad (9)$$

где $\delta_{BG}(5 \text{ K})$ – значение фоновых потерь при 5 К, A и B – подгоночные параметры.

Таблица 2

Основные параметры КХ-пиков в исходных образцах

Образец	\bar{d} , мкм	T_P , К	$\delta_{r \max}$, $\times 10^{-3}$	U_0 , эВ	$\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}$, 10^{-3} K^{-1}	β	ΔT_P , К
Zr-CG	150	257	0.421	0.34	1.321	2.52	-4.0
Zr-HEA	12	254	0.666	0.37	1.662	3.82	-4.5
Zr-HEAD	2	245	17.7	0.36	1.617	3.57	-4.2
Zr-0	0.392	240	13.3	0.37	1.545	3.43	-3.9
Zr-01	0.117	232	6.58	0.35	1.521	2.97	-3.7
Zr-02RT	0.113	231	13.4	0.36	1.523	3.12	-3.6
Zr-02CE	0.100	226	6.76	0.32	1.534	2.88	-3.6

\bar{d} – средний размер зерна в образце; T_P – температура пика; δ – измеренное значение декремента; $\delta_{r \max} = (\delta - \delta_{BG})_{\max}$; δ_{BG} – фоновые потери; U_0 – энергия активации; $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}$ – ширина пика (разность обратных значений температур ниже и выше T_P , при которых достигается половинное значение высоты пика $\delta_{r \max}/2$); β – параметр распределения времен релаксации; ΔT_P – смещение температуры КХ-пика при $\beta \neq 0$.

3.2.1. Высота релаксационных пиков

Рис. 1 и рис. 2а показывают, что уже на первых стадиях применения ИПД высота пиков возрастала более чем на порядок по сравнению с недеформированными и отожженными образцами (см. рис. 1 и рис. 2а). Усложнение схем ИПД и увеличение суммарной пластической деформации ϵ (уменьшение среднего размера зерна \bar{d}) не приводило к дальнейшему увеличению высоты релаксационного пика. Более того, наблюдалась тенденция к некоторому уменьшению высоты пика для наиболее фрагментированных образцов.

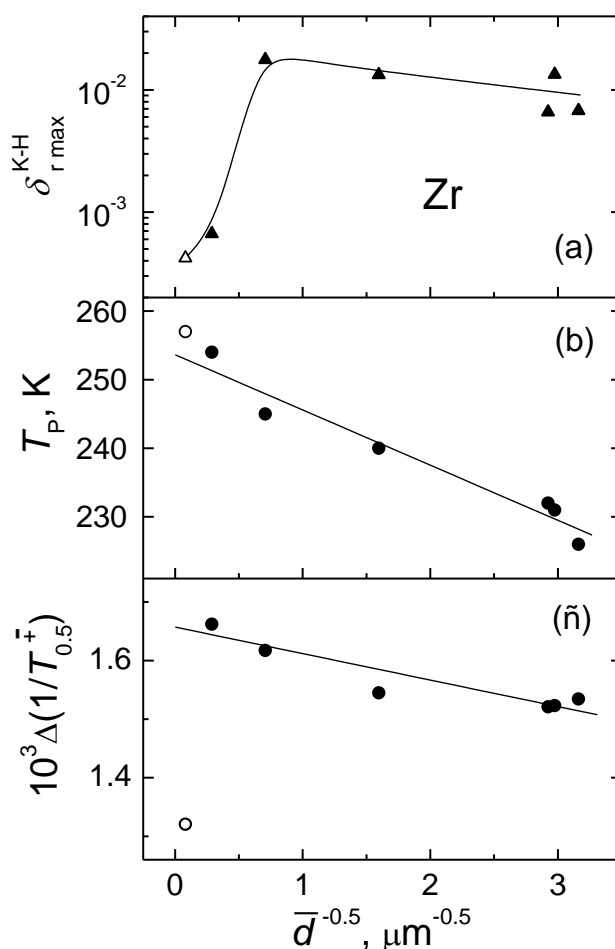


Рис. 2. Зависимость (а) высоты $\delta_{r \max}$, (б) температуры T_p и (с) ширины $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{\text{K-H}}$ КХ-пика в поликристаллическом цирконии от среднего размера зерна \bar{d} . Темные символы – данные настоящей работы, светлые – по данным работы [9]

Высота релаксационного пика $\delta_{r \max}^{\text{K-H}}$ определяется числом возбуждаемых в материале элементарных релаксаторов и вкладом каждого из них в неупругую деформацию кристалла. Значительное увеличение высоты релаксационного пика в деформированных образцах свидетельствует о существенном увеличении числа релаксаторов и/или об увеличении их индивидуального вклада. Элементарным актом динамической КХ-релаксации при приложении внешнего знакопеременного

напряжения является термоактивированное открепление дислокационных сегментов от слабых центров закрепления. Существенное увеличение плотности дислокаций Λ (суммарной длины дислокационных линий в единице объема) в результате ИПД может привести к увеличению числа успешных актов отрыва дислокационных сегментов от локальных центров закрепления при совместном действии приложенной внешней периодической нагрузки и термической активации. Вклад отдельного акта отрыва дислокации в поглощение ультразвука определяется величиной дополнительной неупругой дислокационной деформации, даваемой в результате такого отрыва. Анализ величины этого вклада представляет собой непростую задачу даже для крупнозернистых металлов и монокристаллов [12] и еще более усложняется в случае УМЗ металлов, полученных методами ИПД. Величина пластической деформации достигает нескольких сотен процентов, в металлах действуют все возможные моды пластической деформации: дислокационное скольжение, двойникование, подключаются процессы на границах зерен, наблюдается динамический возврат. При этом в образцах образуется сложная дефектная подсистема с высоким уровнем внутренних напряжений. Плотность дислокаций достигает значений $\Lambda \sim 10^{14} - 10^{15} \text{ м}^{-2}$. Наряду с внутризеренными, существенно возрастает плотность зернограницных дислокаций. Ситуация усложняется также наличием в ГПУ кристаллах существенно различных систем скольжения: базисной, призматической и двух пирамидальных [13]. В этих условиях трудно оценить степень влияния ИПД на вклад отдельного релаксатора в поглощение ультразвука. Мы можем лишь констатировать значительное увеличение суммарной силы динамической КХ-релаксации в результате применения избранных схем ИПД. Стоит также подчеркнуть, что даже в самых мелкозернистых образцах со средним размером зерна около 100 нм в цирконии имеется достаточно большое количество дислокационных сегментов, способных термоактивированно открепляться от локальных центров закрепления (примесных центров) и давать вклад в динамическую КХ-релаксацию.

3.2.2. Температура локализации пиков

Наиболее интересными эффектами, которые были зарегистрированы в настоящей работе, являются систематическое понижение температуры пика T_p^{K-H} и уменьшение его ширины $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}$ при уменьшении среднего размера зерна в образцах (см. рис. 2 b,c и табл. 2).

Положение КХ-пика вдоль температурной оси можно определить, комбинируя (1) и (7):

$$T_p^{K-H} = U_0/k \ln(1.3331/\omega\tau_0). \quad (10)$$

Выражение (10) показывает, что при почти неизменной частоте колебаний ω (что имеет место в нашем эксперименте) смещение T_p^{K-H} в область низких температур в результате ИПД может быть обусловлено уменьшением как величины энергии активации U_0 , так и величины периода попыток τ_0 . Следует отметить, что зависимость

T_p^{K-H} от τ_0 является логарифмической и выражена намного слабее. Чтобы обеспечить наблюдаемое в эксперименте максимальное смещение пика, энергия активации U_0 при неизменном периоде попыток $\tau_0 \sim 10^{-13}$ с должна уменьшиться примерно на 10 %, а период попыток при неизменной энергии активации $U_0 = 0.33$ эВ – в 7 раз. Для того, чтобы сделать окончательный выбор между этими двумя возможными факторами, определяющими температуру локализации пика, требуются дополнительные экспериментальные свидетельства и аргументы (см. ниже).

3.2.3. Ширина пиков

Как уже отмечалось, ширина экспериментально наблюдаемого КХ-пика $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}$ систематически уменьшается с уменьшением среднего размера зерна в образцах. Величину $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}$ можно получить, приравняв правую часть выражения (6) величине $0.5\delta_{r_{max}}^{K-H} = \Delta_M^{K-H}/5.04$ и найдя корни y_1 и y_2 уравнения

$$\frac{10.08}{y^{-2} + 4} [1 - \exp(-\pi/y)] - 1 = 0, \quad (11)$$

где $y_{1,2} \equiv (\omega\tau)_{1,2}$ – величины $\omega\tau$, при которых достигаются половинные значения высоты пика $0.5\delta_{r_{max}}^{K-H}$ (см. выражение (6)). Численное решение (11) показывает, что половинная высота КХ-пика достигается при $y_1 = 6.178$ и $y_2 = 0.405$. Полагая, что на интервале от y_1 до y_2 величины ω , U_0 и τ_0 остаются неизменными, путем несложных преобразований получаем

$$\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H} = 2.725k/U_0. \quad (12)$$

Заметим, что аналогичное выражение для дебаевского пика, которое в тех же предположениях может быть получено аналитически, отличается от (12) только численным коэффициентом [14]:

$$\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^D = 2.634k/U_0. \quad (13)$$

Из выражений (12) и (13) следует, что ширина релаксационных пиков обоих типов обратно пропорциональна энергии активации U_0 , в то время как температура локализации пиков прямо пропорциональна этой величине (см. (10)). Поскольку в наших экспериментах ширина и температура пика уменьшаются с уменьшением среднего размера зерна, ясно, что эти эффекты невозможно объяснить изменением U_0 .

3.2.4. Распределение времен релаксации

Зарегистрированные изменения параметров КХ-пика в результате интенсивной пластической деформации обусловлены, очевидно, изменением условий действия элементарных релаксаторов, и, соответственно, изменением эффективных значений активационных параметров данного релаксационного процесса. Важным следствием интенсивной пластической деформации является создание в металле полей значительных внутренних напряжений, которые в нашем случае могут, как

содействовать, так и препятствовать отрыву дислокационных сегментов от центров закрепления, изменяя, таким образом, эффективные значения активационных параметров U_0 и/или τ_0 и, следовательно, времени релаксации τ . Эти изменения могут быть различными для релаксаторов, действующих в различных областях образца, что должно приводить к образованию спектров (дискретных или непрерывных) значений активационных параметров. Экспериментальным свидетельством наличия таких спектров является значительная ширина наблюдаемых релаксационных пиков, в 2-3 раза превосходящая ширину пика, описываемого выражением (6) для КХ-релаксации. На рис. 3 в координатах $\delta_r^{K-H}(1/T)$ приведены нормированные на максимальные значения декремента $\delta_{r \max}^{K-H}$ температурные зависимости декремента колебаний для трех образцов. Пунктиром показана нормированная на максимальное значение декремента температурная зависимость релаксационной компоненты декремента колебаний, даваемая выражением (6). Хорошо видно, что экспериментально измеренные пики поглощения намного шире, чем предсказывает (6).

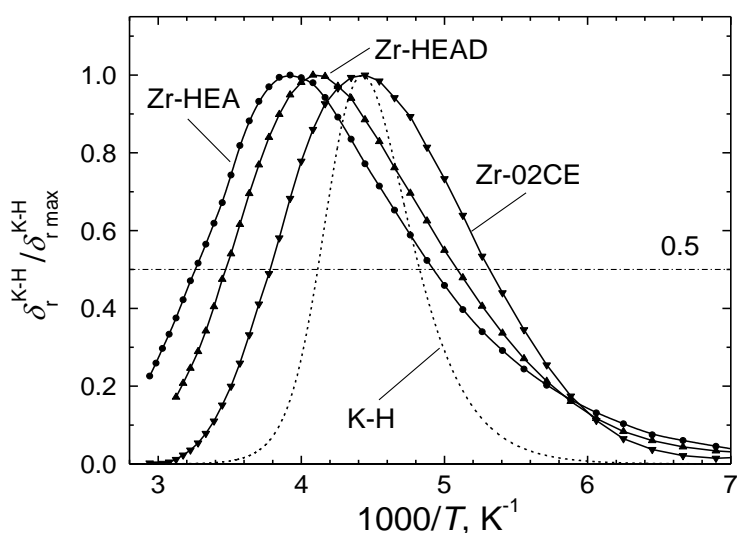


Рис. 3. Нормированные на значения $\delta_{r \max}^{K-H}$ зависимости релаксационных компонент декремента колебаний от обратной температуры $\delta_r^{K-H}(1/T) = (\delta - \delta_{BG})(1/T)$ (для большей ясности приведены данные для трех образцов). Пунктиром показана нормированная зависимость релаксационной компоненты декремента колебаний, полученная в приближении единственного времени релаксации (см. выражение (6))

Выражение (6) справедливо для КХ-релаксации в предположении, что все элементарные релаксаторы одинаковы и действуют в идентичных условиях, т.е. каждой температуре соответствует единственное время релаксации τ . В реальном кристалле, тем более, подверженном воздействию интенсивной пластической деформации, следует ожидать, что имеется обусловленное наличием случайных локальных искажений статистическое распределение времени релаксации вокруг некоторого наиболее вероятного значения τ_m .

В литературе было предложено несколько способов учета распределения времени

релаксации τ при описании уширенных релаксационных пиков. Наиболее последовательным представляется использование нормального распределения Гаусса, но не для самого времени релаксации τ , а для величины $\ln \tau$ [15,16]. В [15] такое рассмотрение было использовано при анализе влияния распределения времен релаксации на ширину и высоту дебаевских пиков. В настоящей работе мы применили развитый в [15] подход для анализа КХ-пиков.

Мнимая часть функции динамического отклика (релаксационная составляющая декремента колебаний) для КХ-релаксации с учетом распределения по $\ln \tau$ может быть выражена как (см. выражение (6))

$$\delta_r^{K-H} = \Delta_M^{K-H} \int_{-\infty}^{+\infty} \Psi(\ln \tau) \frac{2}{(\omega\tau)^{-2} + 4} \left[1 - \exp\left(-\frac{\pi}{\omega\tau}\right) \right] d(\ln \tau), \quad (14)$$

где $\Psi(\ln \tau) d(\ln \tau)$ - относительное число процессов, дающих вклад в δ_r^{K-H} , для которых логарифм времени релаксации попадает в интервал между $\ln \tau$ и $\ln \tau + d(\ln \tau)$. Функция $\Psi(\ln \tau)$ является нормированной функцией распределения и определена таким образом, что

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \Psi(\ln \tau) d(\ln \tau) = 1. \quad (15)$$

Для удобства вычислений и наглядности представления их результатов перейдем от абсолютных значений τ к нормированным и введем переменную

$$z = \ln(\tau/\tau_m) \quad (16)$$

где τ_m – среднее значение времени релаксации, вокруг которого вследствие распределения характеристик всего ансамбля атомных конфигураций имеется некоторый разброс значений τ . Тогда функция распределения Гаусса для z может быть записана как

$$\Psi(z) = \frac{1}{\beta\sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{z}{\beta}\right)^2\right]. \quad (17)$$

Здесь β – параметр распределения Гаусса, который определяет полуширину распределения на уровне $\Psi(z)/\Psi(z_m) = 1/e$, $\Psi(z_m)$ – максимальное значение Ψ , $z_m = z(\tau_m) = 0$ – математическое ожидание для данного распределения. Обычно в качестве параметра распределения Гаусса выбирается величина среднеквадратичного отклонения $\sigma = \frac{\beta}{\sqrt{2}}$ (полуширина распределения на уровне $\Psi(z)/\Psi(0) = 1/\sqrt{e}$), однако мы сохраним форму записи выражения (17), использованную в [15] с тем, чтобы упростить в дальнейшем сравнение с результатами, полученными для дебаевского пика.

Введем дополнительные переменные

$$x = \ln \frac{\omega\tau_m}{1.3331}; \quad (18)$$

$$u = z/\beta. \quad (19)$$

Подставляя (17) в (14) и вводя переменные (18) и (19), получаем выражение для релаксационной составляющей декремента колебаний с учетом наличия гауссовского распределения величины $\ln(\tau/\tau_m)$:

$$\delta_r^{K-H} = \Delta_M^{K-H} f_2^{K-H}(x, \beta), \quad (20)$$

где

$$f_2^{K-H}(x, \beta) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-u^2) \left\{ 1 - \exp\left[-\frac{\pi}{1.3331 \cdot \exp(x + \beta u)}\right] \right\} \frac{du}{4 + (1.3331)^{-2} \cdot \exp[-2(x + \beta u)]}. \quad (21)$$

В этом выражении сохранены обозначения, использованные ранее в [15]. Величина β в выражении (21) выступает в качестве параметра, который определяет изменение основных характеристик КХ-пика при наличии распределения времен релаксации. При $\beta = 0$ функция Гаусса переходит в δ -функцию Дирака и выражение (21) переходит в выражение (6) для случая единственного времени релаксации. На рис. 4 в качестве примера приведены нормированные на значение $f_2^{K-H}(0,0)$ кривые $f_2^{K-H}(x, \beta)$ для четырех значений $\beta = 0, 2, 5$ и 10 . Численное интегрирование в (21) производилось методом Симпсона [17] с помощью ПЭВМ.

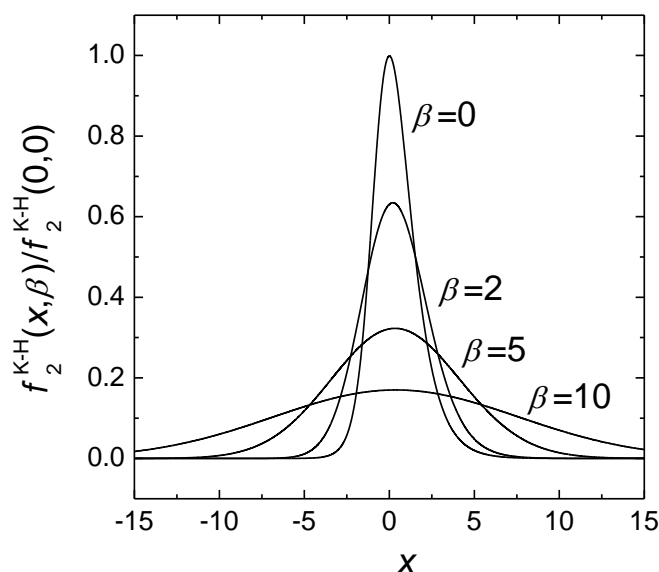


Рис. 4. Влияние величины параметра β распределения Гаусса (17) на высоту и ширину КХ-пика (см. выражение (21))

Анализ выражения (21) позволяет сделать некоторые выводы об изменении основных параметров КХ-пика при наличии распределения времен релаксации, другими словами – об их зависимости от параметра распределения β .

Прежде всего, обращает на себя внимание значительное увеличение ширины релаксационного пика с ростом β . В работе [15] было продемонстрировано, что удобной характеристикой ширины пика является отношение r_2 ширины на уровне

$0.5 \delta_{r_{\max}}^{K-H}$ реального пика с $\beta > 0$ к ширине пика с $\beta = 0$:

$$r_2^{K-H} = \frac{\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}(\beta)}{\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}(0)} \quad (22)$$

где $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}(\beta)$ и $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}(0)$ – ширины пиков с $\beta > 0$ и $\beta = 0$, соответственно. Величину $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}(0)$ можно получить, используя выражение (12). Численный расчет дает возможность установить эмпирическую связь между величинами r_2 и β , что позволяет получить параметр распределения β из экспериментальных данных. На рис. 5 приведена зависимость $\beta^{K-H}(r_2)$ для КХ-пика и для сравнения показана аналогичная зависимость $\beta^D(r_2)$ для дебаевского пика (использованы данные работы [15]). Сплошными линиями на рис. 5 показаны соответствующие аппроксимации для β^D и β^{K-H} , найденные методом наименьших квадратов (в [15] связь между β^D и r_2 задана таблично и аппроксимация отсутствует):

$$\beta^D = (r_2 - 1)^{0.366} + 1.493(r_2 - 1); \quad 1 \leq r_2 \leq 4.6 \quad (23)$$

$$\beta^{K-H} = (r_2 - 1)^{0.276} + 1.618(r_2 - 1). \quad 1 \leq r_2 \leq 6.2 \quad (24)$$

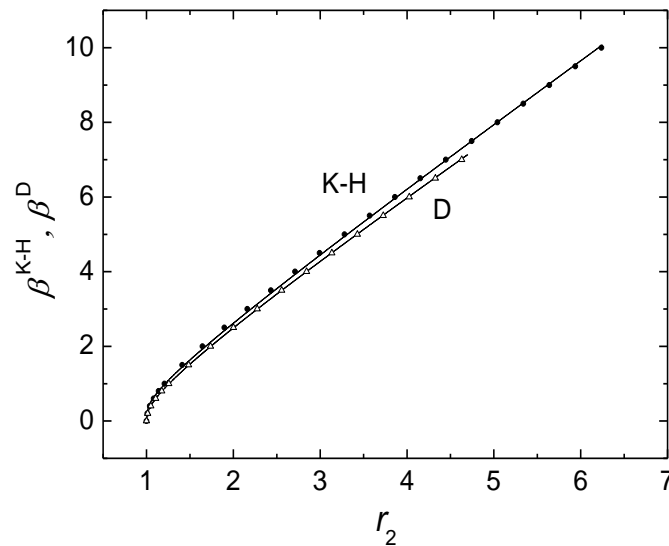


Рис. 5. Связь между параметрами распределения для КХ-пиков β^{K-H} (настоящая работа) и дебаевских пиков β^D (обработаны данные работы [14]) и величиной r_2 . Точки соответствуют численным расчетам, сплошными линиями показаны аппроксимации для β^D и β^{K-H} (выражения (23) и (24), соответственно)

Эти аппроксимации можно использовать для нахождения величины β по вычисленным в соответствии с выражениями (12), (13) и (22) значениям r_2 . На рис. 6а приведены зависимости экспериментально измеренной и вычисленной в соответствии с (12) ($\beta = 0$) ширины КХ-пика от среднего размера зерна \bar{d} (необходимые для вычислений значения U_0 приведены в табл. 2), а на рис. 6б показано изменение величины параметра распределения β с уменьшением среднего размера зерна в образцах.

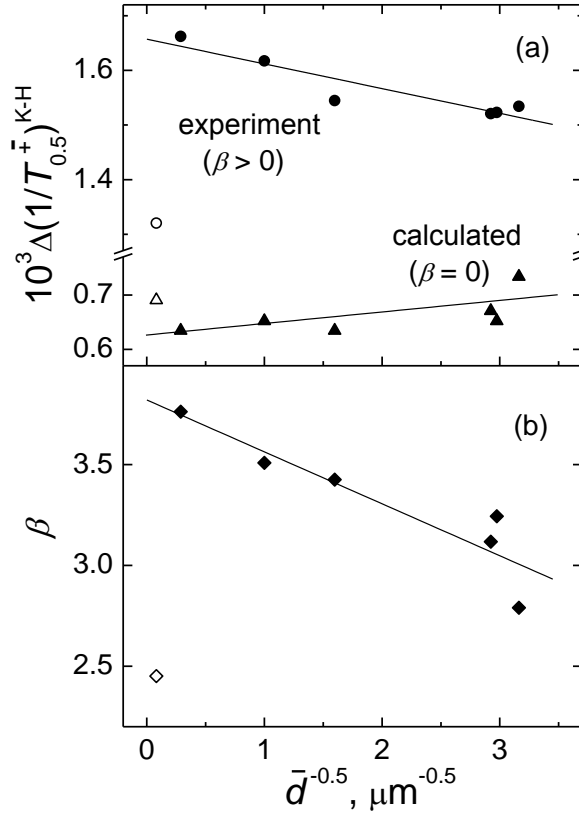


Рис. 6. Зависимости (а) экспериментально измеренной ширины КХ-пика $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}$ и рассчитанной согласно (12) для случая $\beta = 0$ и (б) параметра распределения β от среднего размера зерна \bar{d} . Темные символы – данные настоящей работы, светлые – обработка данных работы [9]

Анализ выражения (21) показывает, что наряду с уширением КХ-пика, с ростом β происходит существенное уменьшение высоты его релаксационной компоненты $f_2^{K-H}(0, \beta)$ (см. рис. 7а). Зависимость $f_2^{K-H}(0, \beta)$ может быть аппроксимирована выражением:

$$f_2^{K-H}(0, \beta) = 0.03 + \frac{0.37}{1 + 0.21\beta^{1.65}}. \quad (25)$$

Аппроксимация (25) показана на рис. 7а сплошной линией. Сила релаксации Δ_M^{K-H} может быть получена из высоты релаксационного пика $\delta_{r \max}^{K-H}$:

$$\Delta_M^{K-H} = \frac{\delta_{r \max}^{K-H}}{f_2^{K-H}(0, \beta)}. \quad (26)$$

Величину Δ_M^{K-H} можно также получить независимым образом из измерений модулей упругости, которые обычно проводятся вместе с измерениями декремента колебаний:

$$\Delta_M^{K-H} = \frac{E_U^{K-H} - E_R^{K-H}}{E_U^{K-H}}, \quad (27)$$

где E_U^{K-H} и E_R^{K-H} - величины нерелаксированного и релаксированного модуля упругости, соответственно. Применимость данного метода ограничивается несколькими обстоятельствами, прежде всего, затруднениями, связанными с корректным определением величин E_U^{K-H} и E_R^{K-H} .

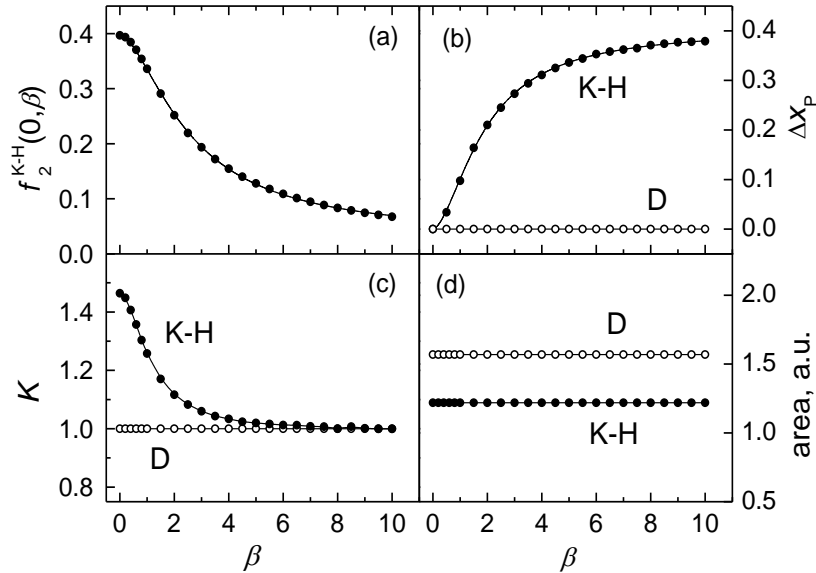


Рис. 7. Зависимость от параметра β (а) высоты релаксационной компоненты $f_2^{K-H}(0, \beta)$ КХ-пика (сплошная линия – аппроксимация выражением (25)), (б) изменения положения пика вдоль оси x , (с) отношения K значений производных в точках перегиба слева и справа от пика (см.

[20] и выражение (28)) и (д) площади под пиком $\int_{-\infty}^{\infty} f_2(x, \beta) dx$. Темные символы относятся к

КХ-пику, светлые – к дебаевскому пику

Величина E_R^{K-H} должна быть взята в температурной области, где все релаксаторы данного типа уже дают вклад в дефект модуля, а другие релаксаторы еще не действуют. В ряде случаев, выполнить это условие в чистом виде оказывается сложно (или даже невозможно) из-за наложения двух или нескольких релаксационных процессов с близкими активационными параметрами. В качестве величины E_R^{K-H} обычно принимают значение модуля упругости в области температур $T \gg T_P$ (если позволяет изученный температурный интервал). Не менее сложным оказывается и выбор величины E_U^{K-H} , поскольку предполагает наличие точно такого же материала, в котором релаксаторы данного типа полностью обездвижены или отсутствуют и не дают вклад в дефект модуля. При изучении релаксационных процессов, инициированных пластической деформацией, в качестве E_U^{K-H} часто принимают значение модуля упругости в хорошо отожженном образце, взятое при той же температуре. При таком

выборе значений E_U^{K-H} и E_R^{K-H} риск недо- или переоценки величины Δ_M^{K-H} остается довольно высоким.

На рис. 8 показаны зависимости Δ_M^{K-H} от среднего размера зерна \bar{d} , полученные обоими методами. При применении «прямого» метода определения Δ_M^{K-H} из измерений динамического модуля в качестве «фоновой» была использована температурная зависимость $E(T)$ в хорошо отожженном образце Zr-CG [18]. Поэтому на рис. 8 приведены заведомо более низкие значения Δ_M^{K-H} , т.к. не был учтен дефект модуля в «фоновом» образце Zr-CG. Дополнительными источниками погрешности могут быть низкотемпературные релаксационные процессы, обусловленные взаимодействием дислокаций с потенциальным рельефом Пайерлса [6], а также взаимодействием дислокационных квазилокальных возбуждений (двухуровневых туннельных систем, релаксационных систем и гармонических осцилляторов) с акустическими колебаниями [19].

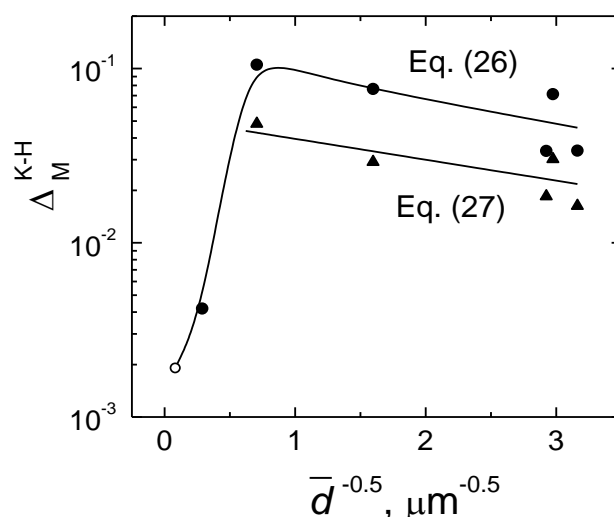


Рис. 8. Зависимости силы релаксации Δ_M^{K-H} от среднего размера \bar{d} зерна, полученные из высоты релаксационной компоненты КХ-пика (см. выражение (26)) и из измерений температурных зависимостей динамического модуля Юнга (см. выражение (27)). При определении Δ_M^{K-H} из измерений динамического модуля, в качестве «фоновой» использована температурная зависимость $E(T)$ в хорошо отожженном образце Zr-CG [18]

Качественно зависимости, полученные двумя независимыми методами, коррелируют между собой, хотя значения Δ_M^{K-H} , полученные из измерений динамического модуля Юнга, оказались меньшими, чем полученные из высоты релаксационной компоненты пика. Стоит отметить, что, несмотря на недооценку, полученная из измерений модуля упругости величина Δ_M^{K-H} более, чем вдвое (от 2,2 до 2,8 раз) превосходит высоту релаксационной компоненты пика. В то же время, для дебаевского пика при максимальных полученных в настоящей работе значениях β отношение $\Delta_M^D / \delta_{\Gamma_{\text{пик}}}^D$ должно было бы быть не более 1.6. Значительная, по сравнению

с высотой пика, величина дефекта модуля Δ_M^{K-H} является дополнительным свидетельством в пользу того, что данный пик является пиком КХ [11].

Рис. 8 еще более наглядно, чем рис. 2а, выявляет тенденцию к уменьшению силы КХ-релаксации с увеличением степени фрагментации образцов. Это означает, что в наиболее фрагментированных образцах общее число успешных актов термоактивированного отрыва дислокаций от центров закрепления снижается. Причиной этого может служить уменьшение средней длины дислокационных сегментов L_c с уменьшением среднего размера зерна в субмикрористаллических образцах.

3.2.5. Положение пика

Более детальный анализ поведения КХ-пика при наличии распределения времен релаксации показывает, что увеличение β заметно изменяет положение и может существенно изменить форму КХ-пика.

Изначально переменная x в (21) была выбрана таким образом, чтобы при $\beta = 0$ максимальное значение $f_2^{K-H}(x, \beta)$ достигалось при $x = 0$ (см. выражение (18)). Анализ показывает, что при увеличении β «центровка» пика нарушается, и максимум на кривой $f_2^{K-H}(x, \beta)$ смещается в сторону положительных значений x (см. рис. 7b), т.е. в сторону более низких температур (подробнее см. ниже, разд. 3.4). В табл. 2 приведены значения Δx_p , пересчитанные на смещение вдоль температурной оси ΔT_p для изученных состояний образцов. Так, для образцов с наименьшим размером зерна Zr-02СЕ это смещение составляло $\Delta T_p \approx -3.6$ К, а для образцов с наибольшим размером зерна Zr-HEA было равным $\Delta T_p \approx -4.5$ К. Такое поведение отличает пик КХ от дебаевского пика, который остается локализованным при $x = 0$ для любых значений β .

3.2.6. Форма пика

Другой отличительной особенностью данного пика является тот факт, что форма этого пика зависит от величины β . В отличие от дебаевского пика, пик КХ при $\beta = 0$ является асимметричным: крутизна его высокотемпературного склона заметно больше, чем низкотемпературного. Мерой асимметрии пика может служить модуль K отношения значений производных в точках перегиба слева и справа от пика. В [20] эта величина была использована как мера асимметрии пика, правда, построенного не в зависимости от обратной температуры, а в «прямых» координатах $\delta_f(T)$. Мы продифференцировали зависимости $f_2(x, \beta)$ для дебаевского пика и КХ-пика:

$$K = \frac{\left| \frac{d}{dx} f_2(x, \beta) \Big|_{\max} \right|}{\left| \frac{d}{dx} f_2(x, \beta) \Big|_{\min} \right|} \quad (28)$$

Дебаевский пик в выбранных координатах является симметричным относительно $x = 0$, и поэтому $K = 1$ независимо от величины β . В отличие от этого, пик КХ при $\beta = 0$

имеет заметную асимметрию: $K^{K-H} = 1.464$. С ростом β величина K^{K-H} довольно быстро убывает и в пределе больших β стремится к единице, т.е. пик становится почти симметричным (см. рис. 7с). Этот результат не согласуется с выводами работы [20], в которой утверждается, что форма КХ-пика при увеличении дисперсии энергии активации остается неизменной (т.е. $K = \text{const}$), и пик сохраняет свою асимметрию.

Несмотря на изменение высоты, ширины, положения и формы релаксационной

$$\int_{-\infty}^{\infty} f_2^{K-H}(x, \beta) dx$$

компоненты КХ-пика, площадь под пиком не зависит от величины параметра распределения и остается неизменной величиной при любом β (см. рис. 7d). Этот результат совпадает с аналогичным результатом, полученным в работе [14] для дебаевского пика.

3.3. Влияние отжига

Для оценки стабильности созданных в результате ИПД структур и обнаружения возможного возврата акустических свойств, часть образцов была подвергнута низкотемпературному отжигу в вакууме при температуре $T_{\text{ann}} = 425$ К в течение 1 часа. Выбранная температура отжига T_{ann} находилась вблизи нижней границы температуры первичной рекристаллизации чистого сильнодеформированного циркония $T_{\text{crist}} \approx 0.2 T_m$ ($T_m = 2098$ К – температура плавления Zr). Известно, что в процессе отжига в структуре образцов могут происходить существенные изменения. Еще до достижения температуры первичной рекристаллизации начинают изменяться параметры дислокационной структуры, в частности, уменьшается плотность дислокаций Λ и изменяется средняя длина дислокационных сегментов L_c . При достижении T_{crist} происходит увеличение среднего размера зерна, которое может сопровождаться образованием тех или иных текстур отжига (наблюдается преимущественный рост зерен определенных ориентаций). Кроме того, при повышенных температурах существенные изменения могут претерпевать поля внутренних напряжений за счет появления дополнительных каналов их релаксации и увеличения скорости диффузионных процессов. Все эти изменения находят свое отражение в изменении акустических свойств изученных образцов, в том числе, параметров релаксационных пиков внутреннего трения. Ниже приведены данные о влиянии отжига образцов циркония с различным средним размером зерна на основные параметры КХ-пика.

3.3.1. Температура локализации пика

В результате отжига температура локализации пика T_p^{K-H} возрастала, т.е. наблюдался частичный возврат этого параметра КХ-пика (см. Табл. 3). Увеличение температуры пика было тем больше, чем более фрагментированными были образцы. Очевидно, что структуры УМЗ образцов, созданные путем применения сложных схем ИПД, оказались наименее устойчивыми к действию повышенной температуры. Т.к.,

согласно (10), величина T_p^{K-H} определяется комбинацией значений U_0^{K-H} и τ_0^{K-H} , наблюдаемый возврат T_p^{K-H} в результате рекристаллизационного отжига может служить свидетельством влияния среднего размера зерна (прямого или опосредованного) на величину активационных параметров КХ-релаксации. Однако вопрос о природе такого влияния в настоящее время остается открытым и требует дальнейшего изучения.

Таблица 3

Изменение параметров КХ-пиков в результате отжига в течение 1 часа при 425 К

Образец	Zr-0		Zr-01		Zr-02RT		Zr-02CE	
	до	после	до	после	до	после	до	после
T_p, K	240	242 (+ 2)	232	236 (+ 4)	231	239 (+ 8)	226	236 (+10)
β	3.43	3.42 (-0.01)	2.97	2.65 (-0.32)	3.12	2.6 (-0.52)	2.88	2.3 (-0.58)
$10^2 \Delta_M^{K-H}$, ф-ла (26)	7.64	5.33 (-30.2%)	3.37	2.49 (-26.1%)	7.13	6.35 (-10.9%)	3.38	2.69 (-20.4%)
$10^2 \Delta_M^{K-H}$, ф-ла (27)	2.91	2.54 (-12.7%)	1.85	1.60 (-13.5%)	3.02	2.56 (-16.2%)	1.63	1.08 (-33.7%)

В скобках указано изменение соответствующей величины в результате отжига.

3.3.2. Ширина пика

В отличие от температуры пика, его ширина, мерой которой является параметр гауссова распределения β , при отжиге не претерпевала возврат. Более того, в результате отжига она продолжала уменьшаться (см. Табл. 3). Это свидетельствует о том, что, по крайней мере, на начальной стадии рекристаллизации образцов УМЗ циркония разброс значений активационных параметров динамической КХ-релаксации не увеличивался, а даже несколько уменьшался, причем тем больше, чем более фрагментированными были образцы. Очевидно, что причина этого уменьшения иная, чем та, что приводит к уменьшению β в процессе фрагментации образцов. Если уменьшение β при уменьшении среднего размера зерна \bar{d} может быть связано с сужением распределения длин дислокационных сегментов за счет части наиболее длинных сегментов $L > \bar{d}$, то уменьшение β при отжиге может свидетельствовать о дальнейшей гомогенизации этого распределения за счет уменьшения плотности дислокаций и снижения уровня внутренних напряжений.

3.3.3. Сила релаксации

Величина силы релаксации Δ_M^{K-H} , полученная как из высоты пика, так и из измерений динамического модуля Юнга, после отжига уменьшалась во всех образцах (см. выражения (26) и (27) и табл. 3), т.е. данный параметр КХ-релаксации, как и температура пика, имел тенденцию к возврату. Уменьшение силы релаксации, по-видимому, является следствием снижения плотности дислокаций и, соответственно, уменьшения числа действующих релаксаторов.

3.4. Сравнение экспериментальных и теоретических зависимостей

Завершая обсуждение результатов по изучению динамической КХ-релаксации в УМЗ цирконии, приведем несколько примеров подгонки нормированной теоретической зависимости $\frac{f_2^{K-H}(x, \beta)}{f_2^{K-H}(0, \beta)}$ к экспериментальным зависимостям $\frac{\delta_r^{K-H}(x, \beta)}{\delta_r^{K-H}(0, \beta)}$, полученным на различных образцах, как в исходном, так и в отожженном состоянии (см. рис. 9).

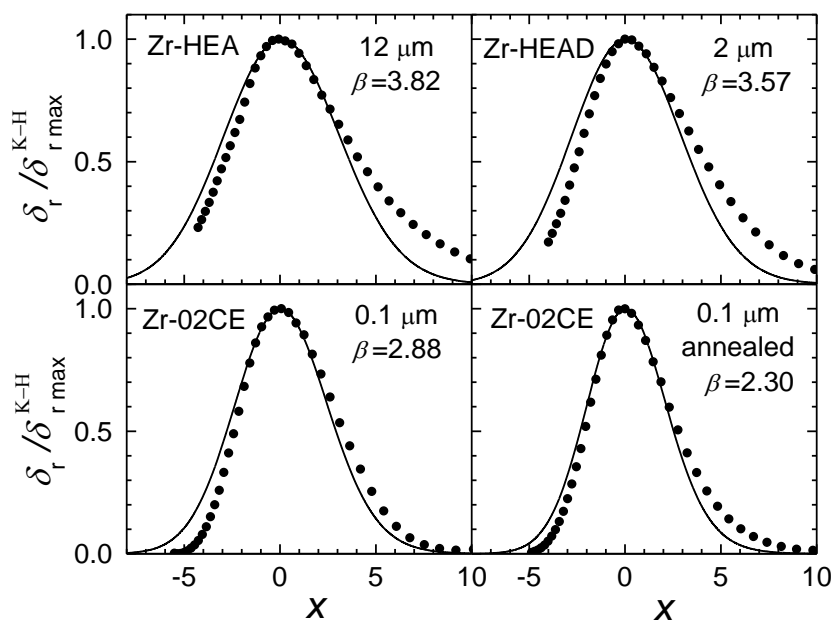


Рис. 9. Экспериментальные (точки) и теоретические (сплошные линии) зависимости нормированных на максимальное значение релаксационных компонент декремента колебаний в образцах, показанных на рис. 3.

Для экспериментальных кривых в качестве оси абсцисс выбрана переменная $x = (U_0/k)(1/T - 1/T_P)$ (см. выражение (29)), значения U_0 и T_P взяты из табл. 2

Для построения экспериментальных и теоретических кривых в качестве оси абсцисс была выбрана переменная [21]

$$x = \frac{U_0}{k} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_P} \right) \quad (29)$$

вместо переменной x , даваемой выражением (18). Выражение (18) применимо при анализе экспериментальных данных, полученных при постоянной температуре образца (т.е. при $\tau_m = \text{const}$) и изменении частоты колебаний ω . В нашем эксперименте был

реализован другой предельный случай: при практически неизменной частоте колебаний ($\omega \approx \text{const}$) в достаточно широких пределах изменялась температура T образца (т.е. варьировалась величина времени релаксации τ_m , экспоненциально зависящая от T). Значения U_0 и T_p были взяты из табл. 2. Значения β^{K-H} были получены в соответствии с выражениями (12), (22) и (24) (см. табл. 2).

В [21] было показано, что выражение (29) справедливо в предположении, что активационные параметры данного релаксационного процесса не зависят существенным образом от температуры. Кроме того, предполагалось, что β^{K-H} и частота колебаний ω , по крайней мере, на интервале сравнения, не зависят от температуры (подробнее см. в [15,16]). Положение теоретических кривых было скорректировано так, чтобы максимум приходился на $x = 0$ (см. рис. 7b). Рис. 9 показывает удовлетворительное согласие теоретических и экспериментальных зависимостей, в частности, в отношении ширины пика. В то же время, следует отметить, значительную асимметрию экспериментально наблюдаемых пиков, существенно бóльшую, чем предсказывает выражение (28) даже в случае $\beta^{K-H} = 0$ ($K^{K-H}(0) = 1.464$, см. рис. 7c), что может быть обусловлено целым рядом причин. Основной из них является наличие других релаксационных процессов в области температур $T < T_p^{K-H}$ (см. подробнее в [6]), которые деформируют низкотемпературную ветвь КХ-пика. Кроме искажения формы пика, имеющие иную природу низкотемпературные релаксационные процессы, могут приводить к завышению оценок при определении величин $\Delta(1/T_{0.5}^{\mp})^{K-H}$, r_2^{K-H} , β^{K-H} и, наконец, Δ_M^{K-H} , определяемой по высоте пика. Нами установлено, что отжиг приводит к существенному уменьшению вклада низкотемпературных релаксационных процессов. По-видимому, этим можно объяснить тот факт, что именно в отожженных образцах наблюдается наилучшее согласие теоретических и экспериментальных зависимостей (см. рис. 9d).

4. Выводы

В статье изложены результаты детального экспериментального исследования параметров низкотемпературной акустической КХ-релаксации в крупнозернистых и наноструктурных образцах циркония, приготовленных путем применения различных схем интенсивной пластической деформации (ИПД). Получены экспериментальные данные об изменении температуры локализации релаксационного пика, силы релаксации и параметра распределения времени релаксации в зависимости от среднего размера зерна, а также об изменении указанных параметров при отжиге образцов. Анализ полученных результатов позволяет заключить следующее.

1) В результате действия ИПД поглощение звука во всех образцах значительно возрастает, при этом существенно увеличиваются как фоновые значения декремента колебаний $\delta_{BG}(T)$, так и высота релаксационной компоненты КХ-пика $\delta_{r \text{ пик}}^{K-H}(T_p^{K-H})$. Этот эффект является следствием значительного увеличения плотности дислокаций в процессе ИПД. Наибольшее возрастание декремента наблюдается на первых стадиях

ИПД. При дальнейшем накоплении суммарной пластической деформации наблюдается тенденция к некоторому снижению высоты релаксационного пика, что может быть обусловлено уменьшением вероятности открепления дислокационных сегментов вследствие сильной фрагментации зеренной структуры.

2) Экспериментально измеренная ширина пика $\Delta(1/T_{0,5}^{\mp})^{K-H}$ оказалась намного большей, чем предсказывается теоретическим рассмотрением данной релаксации в предположении единственного времени релаксации τ для всех релаксаторов. Уширение пика обусловлено разбросом τ вокруг некоторого среднего значения τ_m . На основе логнормального распределения Гаусса проведен статистический анализ возможного влияния разброса времени релаксации τ на основные параметры КХ-пика. Показано, что параметр распределения β определяет ширину, высоту и асимметрию пика, а также позволяет оценить силу релаксации по высоте пика. В работе приведен алгоритм определения β из экспериментальных данных.

3) По мере уменьшения среднего размера зерна \bar{d} , температура локализации T_p^{K-H} и ширина $\Delta(1/T_{0,5}^{\mp})^{K-H}$ релаксационного пика в фрагментированных образцах систематически уменьшались. Первый эффект обусловлен уменьшением при каждой данной температуре времени релаксации τ , что может быть связано с уменьшением энергии активации U_0 и/или периода попыток τ_0 . Второй эффект обратно пропорционален величине энергии активации U_0 и не зависит явным образом от τ_0 . Следовательно, причиной снижения T_p^{K-H} может быть уменьшение τ_0 с уменьшением среднего размера зерна \bar{d} .

4) В результате отжига температура пика T_p^{K-H} возросла, т.е. наблюдался частичный возврат этого параметра КХ-пика, который был тем более глубоким, чем более фрагментированными были образцы. Это свидетельствует о том, что структуры УМЗ образцов, созданные путем применения сложных схем ИПД, являются менее устойчивыми к действию повышенной температуры.

5) Сила релаксации Δ_M^{K-H} после отжига уменьшалась во всех образцах, т.е. так же, как и температура пика, имела тенденцию к возврату. Уменьшение силы релаксации, по-видимому, является следствием снижения плотности дислокаций и, соответственно, уменьшения числа действующих релаксаторов.

6) В отличие от температуры пика, его ширина не претерпевала возврата и не увеличивалась при отжиге. Более того, в результате отжига она продолжала уменьшаться, т.е. на начальной стадии рекристаллизации образцов разброс значений времен релаксации не увеличивался, а даже несколько уменьшался, причем тем больше, чем более фрагментированными были образцы. Если уменьшение β при уменьшении среднего размера зерна \bar{d} в результате ИПД могло быть связано с сужением распределения длин дислокационных сегментов за счет наиболее длинных сегментов $L > \bar{d}$, то уменьшение β при отжиге свидетельствует о дальнейшей гомогенизации дислокационной структуры образцов, в том числе, вследствие уменьшения плотности дислокаций и снижения уровня внутренних напряжений.

Авторы выражают признательность М.А. Тихоновскому и П.А. Хаймовичу за предоставленные образцы циркония, а также К.А. Чишко и С.Н. Смирнову за интерес к работе и полезные обсуждения.

Список литературы

1. Y. Estrin, A. Vinogradov. *Extreme grain refinement by severe plastic deformation: A wealth of challenging science* // *Acta Materialia* 2013, v. 61, № 3, p. 782-817.
2. T.G. Langdon. *Twenty-five years of ultrafine-grained materials: Achieving exceptional properties through grain refinement* // *Acta Materialia* 2013, v. 61, № 11, p. 7035-7059.
3. E.D. Tabachnikova, A.V. Podolskiy, B. Bonarski, C. Mangler, V.Z. Bengus, S.N. Smirnov, A.N. Velikodny, M.A. Tikhonovsky, M. J. Zehetbauer. *Mechanical properties and microstructure evolution during deformation of ultrafine grained zirconium at low temperatures* // *Rev. Adv. Mater. Sci.* 2010, v. 25, № 2, p. 168-175.
4. А.Н. Великодный, П.А. Хаймович, М.А. Тихоновский, Н.Ф. Андриевская, М.П. Старолат, Т.М. Тихоновская. *Низкотемпературная квазигидроэкструзия сильнодеформированного циркония* // *Физика и техника высоких давлений* 2009, т. 19, № 1, с. 78-82.
5. И.В. Колодий, Н.Ф. Андриевская, В.Н. Воеводин, А.Н. Великодный, М.А. Тихоновский, Г.Е. Сторожиллов. *Особенности формирования структуры циркония при интенсивной пластической деформации* // *Вопросы атомной науки и техники* 2015, № 5 (99), с. 98-104.
6. Е.Н. Ватажук, П.П. Паль-Валь, В.Д. Нацик, Л.Н. Паль-Валь, М.А. Тихоновский, А.Н. Великодный, П.А. Хаймович. *Низкотемпературные акустические свойства наноструктурного циркония, полученного методом интенсивной пластической деформации* // *Физика низких температур* 2011, т. 37, №2, с. 210-220.
7. В.Д. Нацик, П.П. Паль-Валь, С.Н. Смирнов. *К теории составного пьезоэлектрического вибратора* // *Акустический журнал* 1998, т. 44, № 5, с. 640-647.
8. С.П. Никаноров, Б.К. Кардашев. *Упругость и дислокационная неупругость кристаллов*. М.: "Наука", 1985. 254 с.
9. P.P. Pal-Val, M. Hamersky, Z. Trojanova, P. Lukač. *Internal friction in α -zirconium polycrystals* // *Physica Status Solidi (a)* 1991, v. 125, № 1, p. K13 - K16.
10. Z. Trojanova, P. Lukač, P.P. Pal-Val. *Elastic and anelastic behaviour of zirconium polycrystals* // *Materials Science Forum* 1996, v. 210-213, part 1, p. 495-502.
11. M. Koiwa, R.R. Hasiguti. *A theory of internal friction peak due to thermal unpinning of dislocations and its application to P1 peak in copper* // *Acta Metallurgica* 1965, v. 13, № 12, p. 1219-1230.
12. L.J. Teutonico, A.V. Granato, K. Lücke. *Theory of the thermal breakaway of a pinned dislocation line with application to damping phenomena* // *Journal of Applied Physics* 1964, v. 35, № 1, p. 220-233.
13. М.М. Савин, В.М. Чернов. *Взаимодействие с точечными дефектами в кристаллах с гексагональной плотноупакованной структурой* // *Физика твердого тела* 1975, Т.17, № 2, С. 409-412.
14. R. De Batist. *Internal Friction of Structural Defects in Crystalline Solids*. Amsterdam: North Holland, 1972, p. 75.
15. A.S. Nowick, B.S. Berry. *Lognormal distribution function for describing anelastic and other relaxation processes. I. Theory and numerical computations* // *IBM Journal of Research and Development* 1961, v. 5, № 10, p. 297-311.

16. А. Новик, Б. Берри. Релаксационные явления в кристаллах / Пер. с англ. / Под ред. Э.М. Надгорного и Я.М. Сойфера. М.: «Атомиздат», 1975. с. 77.
17. Я.Б. Зельдович, А.Д. Мышкис. Элементы прикладной математики. М.: «Наука», 1967, С. 14.
18. P.P. Pal-Val, M. Hamersky, Z. Trojanova, P. Lukač. Young's modulus of α -zirconium polycrystals as a function of temperature between 6 and 320 K // *Physica Status Solidi (a)* 1991, v. 125, № 1, p. K17-K20.
19. В.Д. Нацик, Е.Н. Ватажук, П.П. Паль-Валь, Л.Н. Паль-Валь, В.А. Москаленко. Наблюдение низкотемпературных аномалий стекольного типа при изучении акустических свойств наноструктурных металлов // *Физика низких температур* 2013, т. 39, № 12, с. 1381–1396.
20. В.Д. Нацик, Ю.А. Семеренко. Дислокационные механизмы низкотемпературного внутреннего трения в наноструктурных материалах // *Физика низких температур* 2016, Т. 42, № 2, С. 185-197.
21. A.S. Nowick, B.S. Berry. Lognormal distribution function for describing anelastic and other relaxation processes. *Data analysis and applications* // *IBM Journal of Research and Development* 1961, v. 5, № 10, p. 312-320.