

Низкотемпературный α -пик внутреннего трения в ниобии и его связь с релаксацией кинков на дислокациях

В. Д. Нацик, П. П. Паль-Валь, Л. Н. Паль-Валь, Ю. А. Семеренко

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: palval@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 3 ноября 2000 г.

Проведено исследование влияния примесей на параметры α -пика внутреннего трения в моно- и поликристаллах ниобия, зарегистрированного в области температур 200–250 К при частоте колебаний ≈ 80 кГц. Установлено, что увеличение чистоты образцов приводит к повышению температуры локализации пика, а также к увеличению его ширины и амплитуды. Ранее структурная чувствительность этого пика наблюдалась при изучении влияния на него предварительной пластической деформации, термоциклирования и низкотемпературного возврата. Предложено статистическое описание всей совокупности экспериментальных данных, которое учитывает зависимость энергии активации и периода попыток как от концентрации примесей, так и от характерной величины и статистического разброса внутренних напряжений. Разработан новый алгоритм анализа экспериментальных данных, позволяющий получать соответствующие различным структурным состояниям образцов эмпирические оценки значений энергии активации, ее дисперсии, периода попыток и силы релаксации. Показано, что α -пик является следствием резонансного взаимодействия упругих колебаний с процессом термически активированного зарождения пар кинков на дислокационных сегментах, лежащих в долинах потенциального рельефа Пайерлса. Получены эмпирические оценки величин основных параметров, характеризующих этот процесс. Установлено качественное согласие свойств α -пика в ниобии с кинетической теорией зарождения и релаксации дислокационных кинков Х. Энгельке.

Проведено дослідження впливу домішок на параметри α -піка внутрішнього тертя в моно- і полікристалах ніобію, зареєстрованого в області температур 200–250 К при частоті коливань ≈ 80 кГц. Встановлено, що збільшення чистоти зразків приводить до підвищення температури локалізації піка, а також до збільшення його ширини і амплітуди. Раніше структурна чутливість цього піка спостерігалась при вивченні впливу на нього попередньої пластичної деформації, термоцилювання та низькотемпературного звороту. Запропоновано статистичний опис всієї сукупності експериментальних даних, який враховує залежність енергії активації та періоду спроб як від концентрації домішок, так і від характерної величини і статистичного розкиду внутрішніх напружень. Розроблено новий алгоритм аналізу експериментальних даних, який дозволяє одержувати відповідні різним структурним станам зразків емпіричні оцінки значень енергії активації, її дисперсії, періоду спроб і сили релаксації. Показано, що α -пик є наслідком резонансної взаємодії пружних коливань з процесом термічно активованого зародження пар кінків на дислокаційних сегментах, що лежать в долинах потенційного рельєфу Пайерлса. Одержано оцінки величин основних параметрів, які характеризують цей процес. Встановлено якісну відповідність властивостей α -піка в ніобії кінетичній теорії зародження і релаксації дислокаційних кінків Х. Енгельке.

PACS: 61.70.Le, 62.40.+i, 62.80.+f

1. Введение

При изучении температурной зависимости внутреннего трения в образцах ниобия различной чистоты и структурного совершенства в области умеренно низких температур разными авторами

неоднократно регистрировались пики акустического поглощения, имеющие свойства, типичные для α -пиков в ОЦК металлах. Температура локализации пиков T_p изменяется от 90 до 200 К при изменении частоты колебаний в широком интер-

вале от инфразвуковых частот порядка 10^{-3} Гц до ультразвуковых частот порядка 10^5 Гц [1–13].

Как правило, предварительная пластическая деформация образцов или воздействие термоупругих напряжений при термоциклировании приводят к увеличению высоты и ширины пиков поглощения, а также сдвигу T_p в сторону более высоких температур. Последующий длительный низкотемпературный отжиг вызывает обратное изменение указанных параметров пика поглощения. Такие особенности поведения формы и параметров данного пика поглощения свидетельствуют о его чувствительности к деталям дефектной структуры изучаемых образцов, в частности, к статистическому ансамблю дислокаций и обусловленных ими случайных полей внутренних напряжений, вводимых в кристаллические образцы при пластической деформации. Следует отметить, что подобный релаксационный резонанс наблюдался также и при изучении внутреннего трения высококчистого железа: при частотах колебаний порядка 10^5 Гц пик акустической релаксации наблюдается в области температур порядка 50 К [14].

В работах [13,14] было показано, что в первом приближении обсуждаемый пик внутреннего трения соответствует некоторому термически активированному релаксационному процессу с экспоненциально зависящим от температуры T временем релаксации

$$\tau(T) = \tau_0 \exp\left(\frac{U_0}{kT}\right), \quad (1)$$

где U_0 — энергия активации, τ_0 — период попыток, k — постоянная Больцмана. Для α -пика в ниобии получены следующие оценки [13]: $U_0 \approx 0,15$ эВ, $\tau_0 \approx 1 \cdot 10^{-10}$ с.

В работах [13,14] было показано, что влияние пластической деформации на форму и параметры α -пиков механической релаксации может быть объяснено статистическим характером параметров элементарных релаксаторов, ответственных за данный пик, и предположением о влиянии пластической деформации на дисперсию энергий активации и объемную плотность релаксаторов. Основные особенности такого влияния соответствуют предположению о неизменности периода попыток τ_0 и появлению статистического распределения энергии активации U , которое описывается плотностью вероятности квазигауссовского типа с дисперсией D^2 :

$$P(U) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}D} \left(\frac{U}{U_0}\right) \exp\left[-\frac{(U - U_0)^2}{2D^2}\right], \quad (2)$$

$D \ll U_0$.

В работах [13,14] также установлено, что корректная микроскопическая интерпретация релаксационного процесса возможна только при использовании экспериментальных данных, полученных в одинаковых условиях идентичными методами измерения внутреннего трения на образцах с контролируемой дефектной структурой. В различных публикациях было предложено несколько возможных микроскопических механизмов релаксационных процессов, определяющих появление пика. Наиболее вероятными из них являются термически активированное зарождение парных кинков на прямолинейных сегментах дислокаций, расположенных в долинах рельефа Пайерлса первого рода, а также термоактивированная диффузия одиночных кинков вдоль дислокационных линий через барьеры Пайерлса второго рода. Однако ни одна из гипотез до настоящего времени не подтверждена всей совокупностью экспериментальных данных, полученных при систематическом изучении однотипных образцов. Можно утверждать, что в настоящее время нет полной уверенности, что все описанные в литературе [1–13] акустические релаксационные резонансы в ниобии в данном температурном и частотном диапазонах соответствуют единому релаксационному процессу. Таким образом, однозначная микроскопическая интерпретация данного релаксационного процесса требует проведения дополнительных экспериментальных исследований. В частности, целесообразно изучить влияние на α -пик наряду с пластической деформацией еще одного фактора, существенно изменяющего структуру образцов, — введение в них примесей.

Цель настоящей работы:

- экспериментальное исследование влияния вариаций структурного состояния образцов (изменения примесного состава, перехода от монокристаллов к поликристаллам, воздействия термоупругих напряжений) на параметры релаксационного резонанса в ниобии в области умеренно низких температур 150–300 К;
- систематизация совокупности накопленных экспериментальных данных;
- дальнейшее развитие теории релаксационного резонанса при наличии статистического распределения энергий активации процесса с учетом возможной структурной чувствительности периода попыток;
- обсуждение возможных микроскопических механизмов, ответственных за появление наблюдаемого релаксационного резонанса.

2. Методика эксперимента

Изучаемые образцы имели форму прямоугольных параллелепипедов с размерами $3 \times 3 \times 21$ мм.

Они вырезались из моно- и поликристаллов ниобия различной чистоты электронским методом, затем притирались на абразивных порошках до достижения требуемых формы и геометрических размеров и подвергались химической полировке для удаления поврежденных при механической обработке приповерхностных слоев. Кристаллографическая ориентация продольной оси монокристаллических образцов определялась с помощью лауэграмм с точностью $\pm 1^\circ$.

Поликристаллы имели крупнозернистую структуру типа «бамбука», т.е. размеры поперечного сечения образцов (3×3 мм) были меньше размера зерен (5–12 мм). Исходная плотность дислокаций в образцах составляла $\sim 10^5$ – 10^6 см⁻². Спектральный анализ показал, что основными примесями замещения были атомы Мо, Та и Zr. Количество примесей внедрения N, O, H было сведено к минимуму путем длительного высокотемпературного отжига сначала в проточном кислороде при давлении $\sim 10^{-3}$ Па, а затем в ультравысоком вакууме $\sim 10^{-8}$ Па [15]. В качестве интегральной меры чистоты образцов служила приведенная величина остаточного электросопротивления $RRR = R_{300}/R_0$; хорошо известно, что для металлических твердых растворов значения параметра RRR обратно пропорциональны концентрации примесей. Для получения RRR измерялись температурные зависимости электросопротивления образцов в интервале 2–300 К, затем экспериментальные данные экстраполировались к 0 К и нулевому значению внешнего магнитного поля, которое использовалось для перевода образцов в нормальное состояние при температурах ниже температуры сверхпроводящего перехода $T_c \approx 9,3$ К

Таблица 1

Основные характеристики образцов

Образец	Ориентация	RRR
Nb-37	Монокристалл $\langle 100 \rangle$	37
Nb-290	Крупнозернистый поликристалл	290
Nb-660	Крупнозернистый поликристалл	660
Nb-970	Крупнозернистый поликристалл	970
Nb-10 000	Монокристалл $\langle 100 \rangle$	10 000

[16]. Основные характеристики образцов приведены в табл. 1.

Акустические измерения проводились методом двойного составного вибратора [17,18]. Использование резонансных методов при исследовании достаточно тонких дислокационных эффектов является наиболее целесообразным, так как они могут обеспечить достаточно высокую точность измерения величины декремента колебаний δ . В образцах возбуждались продольные стоячие волны с частотой f порядка 70–90 кГц при постоянной амплитуде ультразвуковой деформации $\epsilon_0 \sim 10^{-7}$, что соответствовало амплитудно-независимой области. Значения частот колебаний для образцов с различной структурой приведены в табл. 2. В области температур $150 \text{ К} < T < 300 \text{ К}$ измерялись температурные зависимости декремента колебаний $\delta(T)$. Измерения выполнялись как в режиме охлаждения, так и в режиме нагрева. Скорость охлаждения и нагрева образцов при

Таблица 2

Зависимость параметров пика поглощения от структурного состояния образцов

Образец	Цикл измерений	f , кГц	$10^4 \delta_{bg}$	T_h , К	T_p , К	$T_k^{(-)}$, К	$T_k^{(+)}$, К	K_{exp}	$10^{10} \tau_0 / c$	d	$10^3 C_r \Delta_0$
Nb-970	1-е охлаждение	83	1,4	79	234	204	260	1,61	11,0	0	1,8
Nb-660		87	1,4	78	221	192	242	1,56	6,7	0	1,2
Nb-290		79	1,4	55	198	180	222	1,48	3,0	0	0,35
Nb-970	1-й отогрев	83	0,9	—	275	221	—	—	11,0	1,7	5,69
Nb-660		87	0,9	—	255	205	—	—	6,7	2,0	3,38
Nb-290		79	0,9	—	251	204	—	—	3,0	2,2	3,48
Nb-10 000	1-й отогрев	73	1,9	—	265	215	—	—	16,0	1,2	5,50
Nb-37		83	1,9	86	226	191	243	1,39	0,8	2,3	0,74

измерении температурных зависимостей декремента затухания δ составляла ~ 1 К/мин.

Отметим, что опыт проведения акустических измерений в режиме «охлаждение — отогрев» привел к выводу о роли термоциклирования как важного фактора, позволяющего изменять структурное состояние образцов [13–16].

3. Результаты измерений

На рис. 1 показаны температурные зависимости декремента $\delta(T)$ для поликристаллических образцов с различным содержанием примесей: результаты измерений в ходе первого охлаждения от комнатной температуры до 150 К (рис. 1, *a*); данные, полученные на тех же образцах в ходе последующего нагрева от 150 до 300 К (рис. 1, *б*). На рис. 2 приведен температурный спектр поглощения $\delta(T)$ для монокристаллических образцов с различным содержанием примесей в ходе первого нагрева от 150 до 300 К после предварительного

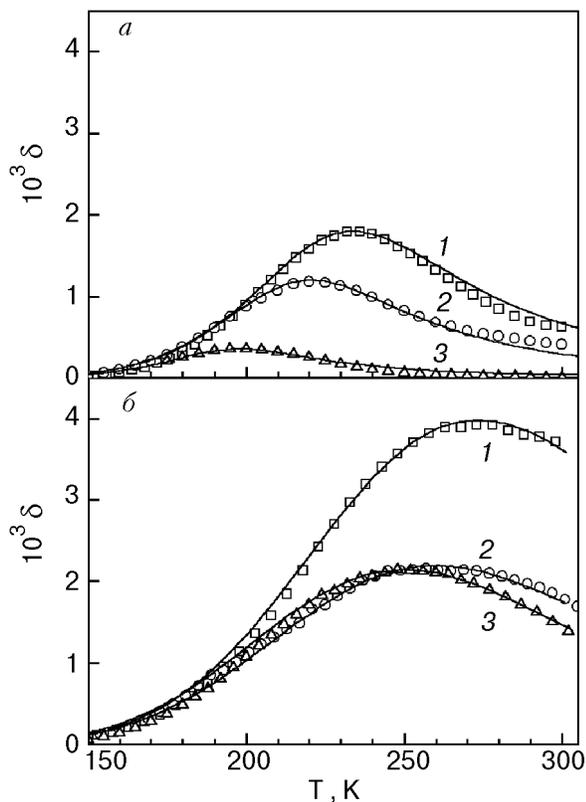


Рис. 1. Пики внутреннего трения в крупнозернистом поликристаллическом ниобии различной чистоты: $RRR = 970$ (1); 660 (2); 290 (3). Температурные зависимости декремента $\delta(T)$ получены в ходе первого охлаждения образцов от комнатной температуры до 150 К (*a*) и в ходе последующего отогрева от 150 до 300 К (*б*). Из экспериментальных данных вычтен постоянный фон $\delta_{bg} = 1,4 \cdot 10^{-4}$. Сплошными линиями показаны теоретические зависимости, рассчитанные по формуле (6) при значениях параметров, указанных в табл. 2.

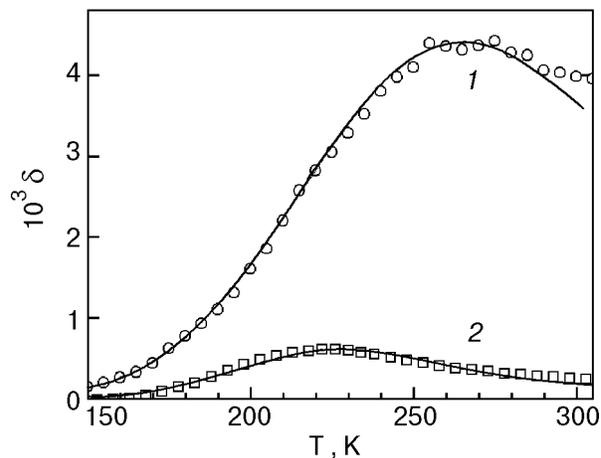


Рис. 2. Пики внутреннего трения в монокристаллическом $\langle 100 \rangle$ ниобии различной чистоты: $RRR = 10000$ (1); 37 (2). Зависимости получены в ходе первого отогрева от 150 до 300 К. Из экспериментальных данных вычтен постоянный фон $\delta_{bg} = 1,9 \cdot 10^{-4}$. Сплошными линиями показаны теоретические зависимости, рассчитанные по формуле (6) при значениях параметров, указанных в табл. 2.

охлаждения до 6 К. Во всех случаях на температурных зависимостях декремента $\delta(T)$ зарегистрированы хорошо выраженные на малом по величине фоне пики внутреннего трения. Их положение на оси температур и характерная ширина существенно зависят от структурного состояния образцов, которое варьируется как изменением концентрации примесей, так и термоциклированием. Увеличение концентрации примесей как в поликристаллических, так и в монокристаллических образцах приводит к существенному сдвигу температуры локализации пика T_p в область более низких температур (см. рис. 3, *a*) и понижению амплитуды пика (рис. 3, *б*). Сдвиг T_p в область более высоких температур и уширение пика под воздействием термоупругих напряжений в ходе термоциклирования соответствуют закономерностям, описанным ранее [13,14].

Важной характеристикой пиков является их ширина. В физике внутреннего трения в качестве количественной характеристики пиков поглощения очень часто используется параметр

$$T_h = T_h^{(+)} - T_h^{(-)}, \quad (3)$$

где $T_h^{(+)}$, $T_h^{(-)}$ — температуры, для которых $\delta(T_h^{(+)}) = \delta(T_h^{(-)}) = 1/2 \delta_{\max}$ (здесь δ — значения декремента, из которых вычтен фон). Фон поглощения, температуры T_p и ширины T_h изучаемого пика для различных типов структурного состояния образца приведены в табл. 2.

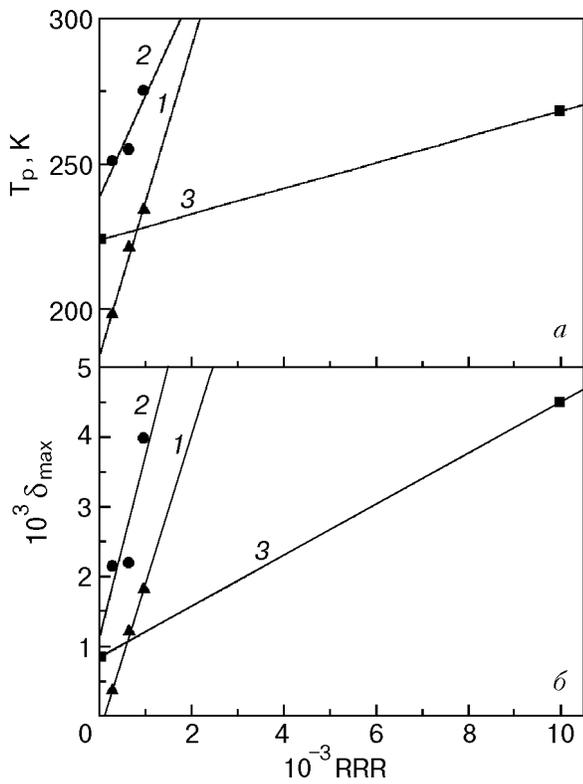


Рис. 3. Зависимость температуры локализации T_p (а) и амплитуды δ_{\max} (б) пиков акустического поглощения от параметра RRR , характеризующего чистоту образцов: 1 – поликристаллы, первое охлаждение от 300 до 150 К; 2 – поликристаллы, отогрев от 150 до 300 К после первого охлаждения; 3 – монокристаллы, отогрев от 150 до 300 К после первого охлаждения.

При анализе экспериментальных данных часто приходится иметь дело с пиками акустической релаксации, наблюдаемыми в условиях достаточно большого фонового поглощения, и использование параметра T_h требует корректного вычитания фона. Если к тому же фон хотя бы слабо зависит от температуры на ширине пика, то корректная процедура его вычитания становится затруднительной. По нашему мнению, более удобными характеристиками ширины пика, в меньшей степени зависящими от фонового поглощения, являются параметры $T_k^{(-)}$, $T_k^{(+)}$ и $T_k = T_k^{(+)} - T_k^{(-)}$, где $T_k^{(\mp)}$ – точки перегиба на зависимости $\delta(T)$, в которых $\partial^2\delta(T)/\partial T^2 = 0$. Значения температур $T_k^{(\mp)}$ для изучаемого пика также приведены в табл. 2.

4. Анализ результатов эксперимента

В работе [13] было показано, что обсуждаемый релаксационный процесс обусловлен взаимодействием упругих колебаний образца с системой однотипных релаксаторов дислокационной природы, имеющих в совершенном кристалле единую

энергию активации U_0 и период попыток τ_0 . В отсутствие статистического разброса значений этих параметров на температурной зависимости декремента колебаний появляется дебаевский пик

$$\delta(T, \omega) = 2C_r\Delta_0 \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2}, \quad (4)$$

где $\tau(T)$ – время релаксации (1), C_r и Δ_0 – соответственно безразмерная концентрация и «мощность» элементарных релаксаторов, $\omega = 2\pi f$ – круговая частота колебаний. Температура $T_p^{(0)}$ и ширина $T_h^{(0)}$ для этого пика определяются соотношениями

$$T_p^{(0)} = \frac{U_0}{k \ln \Omega}, \quad T_h^{(0)} = \frac{2T_p^{(0)}}{\ln \Omega} = \frac{2U_0}{k(\ln \Omega)^2}, \quad \Omega = \frac{1}{\omega\tau_0}. \quad (5)$$

Введение в кристалл дополнительных дислокаций, изменение внутренних напряжений под действием внешней нагрузки или термоциклирования, изменение примесного состава кристалла и другие факторы подобного рода могут весьма существенно влиять на все перечисленные выше параметры релаксационного процесса и приводить к изменениям температуры пика T_p , его высоты $\delta_{\max} = C_r\Delta_0$ и параметров T_h и T_k , характеризующих ширину пика.

4.1. Влияние термоциклирования и концентрации примесей на параметры релаксационного процесса

Выполненный в работах [13,14] анализ показал, что сдвиг температуры пика акустической релаксации T_p в область более высоких температур, а также уширение пика под воздействием термоциклирования можно интерпретировать как следствие влияния термоупругих напряжений на статистическое распределение энергий активации элементарных релаксаторов. Если статистическое распределение для U описывать функцией (2) и пренебрегать статистическим разбросом для τ_0 , то выражение (4) следует заменить более сложным выражением:

$$\bar{\delta} = C_r\Delta_0 F_1(\theta, \Omega, d), \quad F_1 = \frac{2\Omega\theta^2}{\sqrt{\pi}d \ln \Omega} \times \int_1^\infty dx \frac{\ln x}{x^2 + \Omega^2} \exp\left[-\left(\frac{\theta \ln x - \ln \Omega}{d}\right)^2\right]; \quad (6)$$

$$\theta = \frac{T}{T_p^{(0)}}, \quad d = \frac{\sqrt{2}D}{kT_p^{(0)}} = \frac{\sqrt{2}D}{U_0} \ln \Omega. \quad (7)$$

Функция F_1 может быть вычислена методами численного интегрирования, которое при различных значениях параметра дисперсии d дает серию пиков с изменяющейся формой и температурой локализации [13]. При малых значениях d температурная зависимость функции $F_1(\theta, \Omega, d)$ имеет максимум в точке $\theta \approx 1$ и эта функция практически совпадает с дебаевским пиком, а увеличение параметра d приводит к уширению пика и смещению его в сторону высоких температур. В результате численного анализа для температуры пика T_p и его ширины T_h в случае $d \leq 2$ получены простые аналитические аппроксимации:

$$T_p = T_p^{(0)} \left[1 + 2 \left(\frac{d}{\ln \Omega} \right)^2 \right], \quad T_h = T_h^{(0)}(1 + d);$$

$$T_h^{(0)} = \frac{2T_p^{(0)}}{\ln \Omega}. \quad (8)$$

Используя эту формулу и экспериментальные данные, полученные при первом охлаждении на поликристаллах с различным примесным составом (табл. 2), можно убедиться, что влияние примесей на изучаемый релаксационный процесс не сводится только к изменению дисперсии энергии активации (т.е. параметра d). Из (8) для двух структурных состояний, отличающихся значениями этого параметра d_1 и d_2 , получаем

$$\frac{T_p^{(1)} - T_p^{(0)}}{T_p^{(2)} - T_p^{(0)}} = \left[\frac{T_h^{(1)} - T_h^{(0)}}{T_h^{(2)} - T_h^{(0)}} \right]^2. \quad (9)$$

Для поликристаллов с высоким содержанием примесей Nb-60, согласно [13], $U_0 \approx 0,15$ эВ и $\tau_0 \approx 1 \cdot 10^{-10}$ с, поэтому при частоте колебаний $f \approx 80$ кГц имеем $T_p^{(0)} \approx 176$ К, $T_h^{(0)} \approx 35$ К. Если считать, что примеси не влияют на величину τ_0 , то эти значения должны сохраниться и для образцов с другой концентрацией примесей Nb-970 и Nb-290. Тогда при первом охлаждении для Nb-970 разности $T_p^{(1)} - T_p^{(0)} \approx 58$ К и $T_h^{(1)} - T_h^{(0)} \approx 44$ К, а для образцов Nb-290 соответствующие разности $T_p^{(2)} - T_p^{(0)} \approx 22$ К и $T_h^{(2)} - T_h^{(0)} \approx 20$ К. Легко видеть, что отношение этих разностей весьма значительно отклоняется от формулы (9). Таким образом, вызванное изменением концентрации примесей смещение температуры пика и измене-

ние его ширины нельзя интерпретировать как следствие дополнительного статистического разброса энергии активации релаксаторов.

Данный вывод заставляет искать причину наблюдаемого примесного эффекта во влиянии концентрации примесей на параметр τ_0 . Такое влияние свойственно целому ряду механизмов дислокационной релаксации [19–25], поэтому сделанное предположение является вполне естественным. Однако экспериментальная проверка этого предположения затруднена необходимостью учитывать примесный эффект на фоне значительного статистического разброса значений U .

4.2. Новый метод получения эмпирических оценок для периода попыток τ_0 в кристаллах с различной дефектной структурой

Численный анализ выражения (6) для $\bar{\delta}(\theta, \Omega, d)$ показал, что существует возможность получения эмпирических оценок для параметра $\Omega = (\omega\tau_0)^{-1}$ при произвольных значениях d . Эти оценки базируются на регистрации введенных в конце разд. 3 характерных температур $T_k^{(\mp)}$, отвечающих точкам перегиба на температурной зависимости декремента колебаний.

Безразмерные температуры $\theta_k^{(\mp)}$ являются точками максимума и минимума производной $\partial F_1(\theta, \Omega, d)/\partial\theta$ и при наличии дисперсии энергии активации их значения зависят от величины параметра d . Использование численных методов позволяет определить как значения температур $\theta_k^{(\mp)}$, так и величину экстремумов производной $[\partial F_1(\theta, \Omega, d)/\partial\theta]_{\theta=\theta_k^{(\mp)}}$ при различных значениях параметров Ω и d (рис. 4 и 5). На рисунках видно, что эти характеристики пика весьма существенно зависят от параметра дисперсии d . Вместе с тем в результате численного анализа было установлено интересное свойство функции $F_1(\theta, \Omega, d)$, получить которое аналитически не удалось: отношение экстремумов

$$K = \left| \frac{\max \partial F_1(\theta, \Omega, d)/\partial\theta}{\min \partial F_1(\theta, \Omega, d)/\partial\theta} \right|, \quad (10)$$

которое формально является функцией двух параметров, весьма существенно зависит от частотного параметра Ω , но практически не зависит от параметра дисперсии d (рис. 6). В экспериментах как правило реализуется неравенство $\Omega = (\omega\tau_0)^{-1} \gg 1$, чему соответствует неравенство $\ln \Omega \geq 2$. Для таких значений частотного параметра

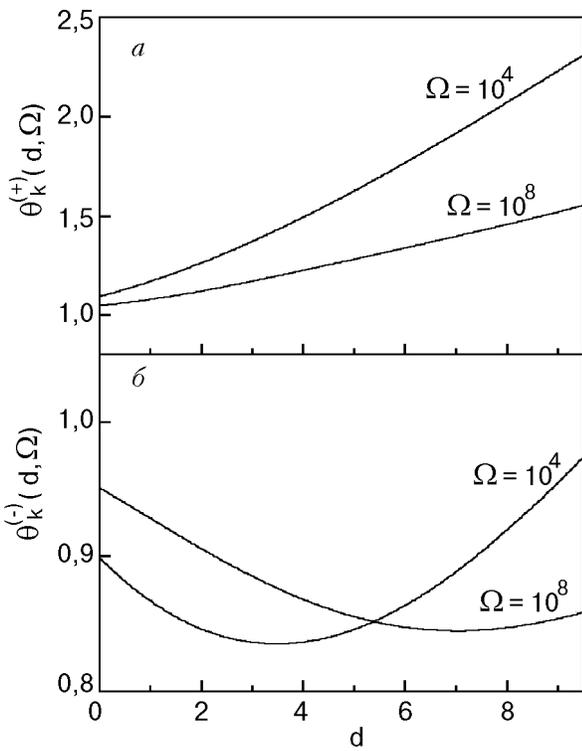


Рис. 4. Зависимости температур точек перегиба $\theta_k^{(\pm)}$ для высокотемпературного (а) и низкотемпературного (б) «крыльев» функции $F_1(\theta, \Omega, d)$ от параметров Ω и d , полученные численными методами.

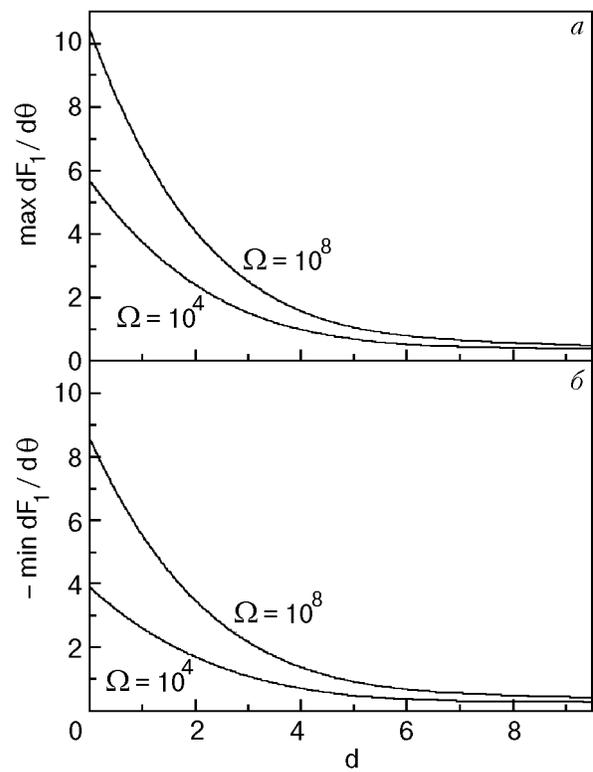


Рис. 5. Зависимости величин экстремумов функции $\partial F_1(\theta, \Omega, d)/\partial \theta$ от значений параметров Ω и d , полученные численными методами.

ра график функции $K = K(\Omega)$, полученный численными методами, допускает с точностью порядка 2% простую аналитическую аппроксимацию:

$$K(\Omega) = 1,1 + \frac{14}{0,4 + (\ln \Omega)^{5/3}}. \quad (11)$$

Таким образом, регистрируя пик на зависимости $\delta_{\text{exp}}(T)$ и выполняя численное дифференцирование, мы получаем возможность находить значение величины $K(\Omega)$ для различных структурных состояний. Сопоставляя эти значения с графиком на рис. 6 или с формулой (11), можно легко оценить эмпирическое значение τ_0 .

Отметим, что в общем случае период попыток τ_0 может являться сравнительно слабой (степенной) функцией температуры и испытывать вместе с энергией активации U_0 некоторый статистический разброс. Предложенный в данном разделе метод определения τ_0 пренебрегает указанными обстоятельствами, так как их влияние на параметры низкотемпературных пиков внутреннего трения можно считать относительно слабым на фоне эффектов, определяемых показателем экспоненты в выражении для времени релаксации (1) [13].

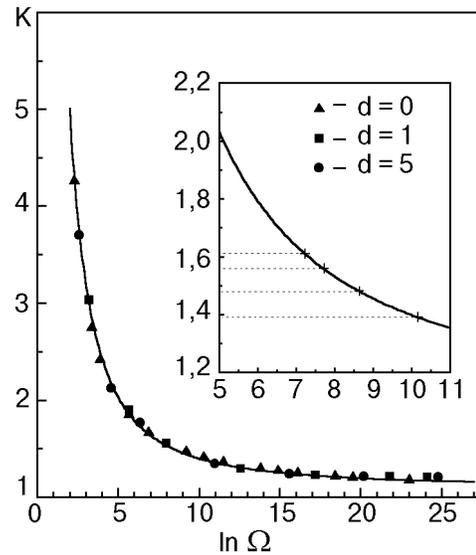


Рис. 6. Зависимость безразмерного параметра $K(\Omega)$, характеризующего форму пика акустической релаксации (6) от обратной безразмерной частоты Ω (результаты численного анализа); сплошной линией показана аналитическая аппроксимация (11). На вставке — фрагмент этого графика, соответствующий интервалу значений $\ln \Omega$, актуальных для условий нашего эксперимента (см. табл. 2); пунктиром обозначены значения K , полученные при анализе экспериментальных данных.

4.3. Количественное сопоставление экспериментальных данных с теоретическими зависимостями

В наших экспериментах данные, позволяющие выполнить описанную выше процедуру, получены для пиков поглощения в поликристаллических образцах при первом охлаждении и в монокристалле Nb-37 при первом отогреве; соответствующие значения K_{exp} приведены в табл. 2. В других случаях большой сдвиг вершины пика и его уширение в сторону высоких температур не позволили оценить положение точки перегиба на высоко-температурном склоне.

Имея значения частоты колебаний $\omega = 2\pi f$ и K_{exp} для каждого из образцов (см. табл. 2) с помощью графика на рис. 6 или формулы (11) легко получить эмпирические оценки величины τ_0 (табл. 2). Используя эти оценки и пробное значение U_0 , можно с помощью численных методов подобрать значения d и $C_r \Delta_0$ для соответствующих образцов и условий эксперимента (охлаждение, отогрев) и совместить экспериментальные зависимости $\delta_{\text{exp}}(T) - \delta_{bg}$ с температурной зависимостью функции $\bar{\delta} = C_r \Delta_0 F_1(\theta, \Omega, d)$. Результат совмещения показан на рис. 1,а. Оказалось, что пикам, которые зарегистрированы при первом охлаждении поликристаллов, соответствует единое значение энергии активации $U_0 = 0,15$ эВ при нулевом значении параметра дисперсии, а период попыток τ_0 систематически уменьшается с увеличением концентрации примесей.

Переходя к анализу пиков поглощения, которые зарегистрированы при первом отогреве поликристаллов и монокристалла Nb-10000, в отсутствие экспериментальных данных для величины $K(\Omega)$ можно рассматривать τ_0 вместе с d и $C_r \Delta_0$ как подгоночные параметры и, варьируя их величины, пытаться совместить функцию $\bar{\delta} = C_r \Delta_0 \times F_1(\theta, \Omega, d)$ с экспериментальными точками $\delta_{\text{exp}}(T) - \delta_{bg}$. При этом естественно прежде всего использовать значения τ_0 для соответствующих значений концентрации примесей, которые получены при анализе пиков, зарегистрированных в процессе первого охлаждения. Результаты для случая поликристаллов показаны на рис. 1,б, а эмпирические значения τ_0 , d и $C_r \Delta_0$ для этих пиков приведены в табл. 2. Оказалось, что предположение о сохранении величины τ_0 при переходе от охлаждения к отогреву подтверждается результатами компьютерного анализа, но при ото-

греве появляется весьма значительный статистический разброс значений энергии активации ($d \approx 2$).

Аналогично подгоночную процедуру можно выполнить и при анализе пика поглощения, зарегистрированного при первом отогреве монокристалла Nb-10000 (см. рис. 2 и табл. 2).

4.4. Дислокационный механизм изучаемого релаксационного резонанса

Из всех описанных в литературе механизмов акустической релаксации нашим экспериментальным данным лучше всего соответствует механизм термически активированного зарождения пар кинков на дислокационных линиях, расположенных в долинах рельефа Пайерлса [20–25]. Первоначально релаксация, обусловленная парными перегибами, была предложена Зегером для интерпретации низкотемпературных пиков внутреннего трения, обнаруженных Бордони при изучении ГЦК металлов [20,26]. Позже данный механизм успешно применялся также при анализе α -пиков в ОЦК металлах [24,27]. Для этого механизма роль энергии активации играет энергия $U_0 = 2W_k$, требуемая для образования на дислокационной линии двух кинков противоположного знака с энергиями W_k . Энергетические характеристики кинков на дислокациях, расположенных в плоскостях преимущественного скольжения в типичных ОЦК металлах, к которым принадлежит и ниобий, детально изучались как в различных физических экспериментах, так и численными методами молекулярной динамики. В результате таких исследований получены характерные оценки $U_0 = 2W_k \sim 0,1-0,2$ эВ. Найденное нами значение $U_0 = 0,15$ эВ попадает в указанный интервал, и это обстоятельство является первым серьезным основанием привлечь механизм зарождения пар кинков для интерпретации изучаемого в данной работе пика внутреннего трения.

Ранее при анализе данного пика мы обращали внимание еще на две особенности, свидетельствующие о его связи с дислокационными процессами [13]:

- высокую чувствительность температуры пика и его высоты к внешним воздействиям (термоупругие напряжения, предварительная пластическая деформация и т. п.);

- аномально большие по сравнению с периодом атомных колебаний значения периода попыток $\tau_0 \sim 10^{-9}-10^{-10}$ с.

Проведенное в настоящей работе исследование влияния примесей на параметры α -пика в ниобии дает дополнительные аргументы в пользу связи данного пика с процессами термически активиро-

ванного зарождения парных перегибов. Примеси, как известно, могут влиять на этот процесс двояким образом. Во-первых, существующие вокруг примесных атомов упругие поля должны, вообще говоря, приводить к появлению некоторых статистических отклонений энергии активации от ее значения $U_0 = 2W_k$ в отсутствие примесей. Этот эффект оказывает существенное влияние на кинетику движения дислокаций через барьеры Пайерлса только в случае достаточно больших значений концентрации примесей и «мощности» примесных атомов как силовых центров, деформирующих кристаллическую решетку. При изучении пластического течения концентрированных сплавов на основе ряда ОЦК металлов [28–32] и олова [33] такое влияние примесей проявлялось в виде эффекта примесного разупрочнения. Однако привлекать этот эффект для интерпретации результатов наших экспериментов по изучению влияния примесей на α -пик акустической релаксации нет необходимости, так как примесный состав не оказывает влияния на эмпирические значения параметра d (см. три верхние строки в табл. 2).

Примесные атомы служат также центрами закрепления дислокационных линий, разбивая их на сегменты конечной длины $L_i(c)$, которая существенно зависит от концентрации примесей c : с ростом концентрации характерная длина сегментов уменьшается. Точки закрепления сегментов ограничивают пробеги возникающих на дислокационных линиях кинков и тем самым могут достаточно сильно влиять на кинетику перемещения дислокаций между соседними долинами рельефа Пайерлса. Кинетическая теория зарождения и релаксации парных перегибов на дислокационных сегментах конечной длины развита в серии работ Энгельке [22,23]. К сожалению, в этих работах отсутствуют простые аналитические выражения, определяющие явные зависимости времени релаксации $\tau(T, L_i)$, температуры $T_p(L_i)$ и высоты $\delta_{\max}(L_i)$ соответствующего пика внутреннего трения от средней длины сегментов L_i (такие зависимости приведены только в виде графиков). Основные качественные результаты этих работ сводятся к двум выводам:

- период попыток τ_0 в выражении для времени релаксации существенно зависит от длины сегмента L_i ; увеличивается с ростом L_i и имеет характерную величину, намного превосходящую периоды атомных колебаний;

- пик внутреннего трения при увеличении L_i возрастает и смещается в сторону высоких температур.

Из общих соображений следует, что в твердых растворах средняя характерная длина дислокационного сегмента связана с концентрацией примесей соотношением $L_i \cong ac^{-\nu}$, где a — параметр решетки, $1 < \nu < 2$ — численный параметр. Поэтому можно утверждать, что теория Энгельке [22,23] качественно объясняет все основные особенности концентрационной зависимости параметров α -пика в ниобии, отраженные в табл. 2. В частности, предложенный нами в [13,14] и в настоящей работе метод получения эмпирических оценок для параметров τ_0 , U_0 , d и $C_r \Delta_0$, определяющих время и «силу» релаксации процесса, ответственного за появление пика, позволил установить отсутствие чувствительности энергии активации к изменению примесного состава образцов ниобия при относительно малых концентрациях примесей и довольно сильную зависимость параметров τ_0 и $\delta_{\max} = C_r \Delta_0$ (табл. 2, рис. 3,б) от концентрации примесей, которая качественно соответствует предсказаниям теории [22,23].

Таким образом, полученные оценки значений энергии активации $U_0 \approx 0,15$ эВ, характерных значений периода попыток $\tau_0 \sim 10^{-9} - 10^{-10}$ с, установленная ранее чувствительность d и $C_r \Delta_0$ к термоупругим напряжениям и зарегистрированная в данной работе зависимость τ_0 и $C_r \Delta_0$ от концентрации примесей позволяют с высокой степенью уверенности сделать вывод: α -пик акустической релаксации в ниобии обусловлен резонансным взаимодействием акустических колебаний с процессом термически активированного зарождения парных перегибов на дислокационных сегментах, расположенных в долинах рельефа Пайерлса.

5. Заключение

В данной работе продолжено детальное экспериментальное исследование и теоретический анализ α -пика внутреннего трения в ниобии, начатое в работе [13]. При реализованных в наших экспериментах значениях частоты упругих колебаний порядка 80 кГц этот пик наблюдался в области умеренно низких температур 200–250 К. Для пика характерна высокая структурная чувствительность: ранее было зарегистрировано существенное смещение положения пика на оси температур, изменение его высоты и ширины под действием термоупругих напряжений, а также в результате предварительной пластической деформации и низкотемпературного возврата [13]. В данном исследовании аналогичные эффекты зарегистрированы при изменении концентрации примесей в образцах.

Теоретическая интерпретация свойств пика основана на предположении о его связи с термически активированным релаксационным процессом дислокационной природы и статистическом описании такого процесса. Предложенная теория учитывает зависимость активационных параметров (энергии активации и периода попыток) от концентрации примесей, а также от характерной величины и статистического разброса внутренних напряжений, которые учитываются выбором специальной функции статистического распределения для энергии активации. Предложен метод и алгоритм численного анализа экспериментальных данных, позволяющий получать эмпирические оценки значений энергии активации, ее дисперсии, периода попыток и силы релаксации, соответствующих различным структурным состояниям образцов.

Статистический анализ всей совокупности экспериментальных данных, полученных при изучении α -пики в ниобии, привел к заключению, что этот пик является следствием резонансного взаимодействия упругих колебаний с процессом термически активированного зарождения пар кинков на дислокационных сегментах, лежащих в долинах рельефа Пайерлса. Получены эмпирические оценки для параметров, характеризующих такой процесс. Установлено качественное согласие выявленных в экспериментах свойств α -пики в ниобии с кинетической теорией зарождения и релаксации дислокационных кинков, предложенной Энгельке [22,23].

Авторы выражают благодарность С. Н. Смирнову за полезные дискуссии и советы по затронутым в данной работе проблемам.

1. L. J. Bruner, *Phys. Rev.* **118**, 399 (1960).
2. R. H. Chambers and J. Schultz, *Acta Metall.* **8**, 585 (1960).
3. R. H. Chambers and J. Schultz, *Phys. Rev. Lett.* **6**, 273 (1961).
4. P. G. Bordoni, M. Nuovo, and L. Verdini, *Phys. Rev.* **123**, 1204 (1961).
5. J. Schultz and R. H. Chambers, *Bull. Am. Phys. Soc.* **9**, 214 (1964).
6. E. J. Kramer and C. L. Bauer, *Phys. Rev.* **163**, 407 (1967).
7. F. M. Mazzolai and M. Nuovo, *Solid State Commun.* **7**, 103 (1969).
8. Р. Чамберс, в кн.: *Физическая акустика*, т. II, ч. А, Мир, Москва (1969).
9. R. Klam, H. Schultz, and H.-E. Schaefer, *Acta Metall.* **27**, 205 (1979).
10. N. Kuramochi, H. Mizubayashi, and S. Okuda, *Scripta Metall.* **14**, 1047 (1980).
11. V. V. Zoninashvili, I. A. Naskidashvili, U. Messerschmidt, V. A. Melik-Shakhnazarov, N. M. Yastrebov, and L. M. Kolesnikova, *Phys. Status Solidi* **A75**, K205 (1983).
12. N. Kuramochi, H. Mizubayashi, and S. Okuda, *Phys. Status Solidi* **A104**, 453 (1987).

13. В. Д. Нацик, П. П. Паль-Валь, Л. Н. Паль-Валь, Ю. А. Семеренко, *ФНТ* **25**, 748 (1999).
14. В. Д. Нацик, П. П. Паль-Валь, Л. Н. Паль-Валь, Ю. А. Семеренко, *ФНТ* **26**, 711 (2000).
15. V. Fellmuth, H. Maas, and D. Elefant, *Metrologia* **21**, 169 (1985).
16. П. П. Паль-Валь, В. Д. Нацик, Л. Н. Паль-Валь, *ФНТ* **21**, 647 (1995).
17. П. П. Паль-Валь, Х.-Й. Кауфманн, *ФНТ* **9**, 325 (1983).
18. В. Д. Нацик, П. П. Паль-Валь, С. Н. Смирнов, *Акустический журнал* **44**, 640 (1998).
19. A. V. Granato and K. Lucke, *J. Appl. Phys.* **27**, 583 (1956).
20. A. Seeger, *Philos. Mag.* **1**, 651 (1956).
21. A. D. Brailsford, *Phys. Rev.* **122**, 778 (1961).
22. H. Engelke, *Phys. Status Solidi* **36**, 231 (1969).
23. H. Engelke, *Phys. Status Solidi* **36**, 245 (1969).
24. A. Seeger and C. Wuthrich, *Nuovo Cimento* **33**, 38 (1976).
25. F. Louchet, L. P. Kubin, and D. Vesely, *Philos. Mag.* **39**, 433 (1979).
26. Д. Ниблетт, в кн.: *Физическая акустика*, т. III, ч. А, Мир, Москва (1969), с. 99.
27. А. Зегер, П. Шиллер, в кн.: *Физическая акустика*, т. III, ч. А, Мир, Москва (1969), с. 428.
28. A. Urakami and M. E. Fine, *Proc. of the First Inter. Conf. on the Mechanical Behavior of Materials*, Kyoto, Japan (1971).
29. Б. В. Петухов, *ФТТ* **13**, 1445 (1971).
30. A. Sato and M. Meshii, *Acta Metall.* **21**, 753 (1973).
31. L. P. Kubin, F. Louchet, J. P. Peyrade, P. Groh, and P. Cottu, *Acta Metall.* **27**, 343 (1979).
32. H. Suzuki, in: *Dislocations in Solids*, v. 4, *Dislocations in Metallurgy*, Amsterdam: North Holland (1979), p. 191.
33. В. П. Солдагов, В. Д. Нацик, А. Н. Дулиин, Г. И. Кириченко, *ФНТ* **26**, 214 (2000).

Low-temperature internal friction α -peak in niobium and its relation to relaxation of kinks in dislocations

V. D. Natsik, P. P. Pal-Val, L. N. Pal-Val, and Yu. A. Semerenko

The influence of impurities on the parameters of the internal friction α -peak registered in Nb single and polycrystals in the temperature range 200–250 K at oscillation frequency \approx 80 kHz is studied. It is found that an increase of the sample purity results in an increase of the peak location temperature, as well as in an increase of its width and amplitude. The structural sensitivity of the peak has been observed in studies of the influence of preliminary plastic deformation, thermocycling and low-temperature recovery on the peak parameters. A statistical description of the experimental data is proposed which takes into account the dependence of activation energy and attempt period both on impurity concentration and on characteristic value and statistical scatter of internal stresses. A new algorithm of the analysis of the experimental data is developed which allows one to obtain empirical estimations of the activation energy and its dispersion as

well as of the attempt period and relaxation strength corresponding to various structural states of the samples. It is shown that the α -peak is due to the resonant interaction of elastic vibrations with the process of thermally activated nucleation of kink pairs in dislocation segments lying in the valleys of the Peierls potential relief. The main parameters de-

scribing this process are estimated. The α -peak properties in Nb are found to agree qualitatively with the kinetic theory of nucleation and relaxation of dislocation kinks proposed by Engelke.