

ДИНАМИКА ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДОВ В МАТЕРИАЛАХ С НЕЛИНЕЙНЫМИ ТЕРМОУПРУГИМИ ХАРАКТЕРИСТИКАМИ

В.В.Слезов, В.Т.Уваров, А.Г.Пономарев, Г.Ф.Попов*, А.И.Калиниченко*
Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»
г.Харьков, Украина, 61108, ул.Академическая, 1;
***Харьковский национальный университет им.В.Н.Каразина г.Харьков, Украина**

Методами радіаційної акустики досліджується динаміка фазових переходів в матеріалах з нелінійними термопружними характеристиками, в тому числі в сплавах з ефектом пам'яті форми, рідкісноземельних металах, ВТНП-кераміці та інш. Показана чутливість температурної залежності параметра Грюнайзена і модуля пружності матеріалів, що досліджуються, до концентрації складових елементів, легируючих добавок, газонасиченості. Обговорюються можливості контролю параметрів, поля поглиненої енергії і фазового стану матеріалів в процесі радіаційного впливу імпульсних великопоточних РЕП.

Методами радиационной акустики исследуется динамика фазовых переходов в материалах с нелинейными термоупругими характеристиками, в том числе в сплавах с эффектом памяти формы, редкоземельных металлах, ВТСП-керамике и др. Показана чувствительность температурной зависимости параметра Грюнайзена и модуля упругости исследуемых материалов к концентрации составляющих элементов, легирующим добавкам, газонасыщенности. Обсуждаются возможности контроля параметров, поля поглощенной энергии и фазового состояния материалов в процессе радиационного воздействия импульсных высокопоточных РЕП.

Radiation acoustic methods are used to investigate the dynamics of phase transitions in materials with nonlinear thermo-elastic properties, including alloys with a shape memory effect, rare-earth metals, high- T_c ceramics, etc. The temperature dependence of the Gruneisen parameter, and the elastic modulus of the materials under study are shown to be sensitive to the concentration of the constituents, alloy components and gas saturation. Discussed are possible methods of control of the parameters, absorbed energy field and the phase state of the materials under radiation action of pulsed high-current relativistic electron beams.

К числу перспективных многофункциональных материалов для ядерно-технологических установок относятся материалы с эффектом памяти формы, редкоземельные металлы, ВТСП-керамика, полимеры и др. В тепловых переменных полях радиационной природы теплофизические характеристики указанных материалов, определяющие их термомеханическую стойкость, могут существенно изменяться в связи с происходящими в них структурными фазовыми переходами (ФП). В настоящее время в технологических целях для обработки материалов используются импульсные высокопоточные релятивистские электронные пучки (РЕП). Воздействие высокопоточных РЕП на материалы может приводить к закалке и аморфизации металлов и сплавов, к структурным и фазовым переходам (ФП) в поверхностных и приповерхностных слоях материалов.

В данной работе методами радиационной акустики исследуется динамика ФП в материалах с нелинейными термоупругими характеристиками, обсуждаются возможности контроля параметров, поля поглощенной энергии и фазового состояния материала непосредственно в процессе радиационного воздействия импульсных высокопоточных РЕП.

Известно, что прохождение импульсного пучка проникающего излучения через вещество сопровождается генерацией термоупругих напряжений [1,2],

несущих информацию о термоупругих и термофизических характеристиках вещества. Природа этого эффекта состоит в том, что быстрый радиационный нагрев вещества приводит к возникновению термоупругих напряжений, то есть проявляется как своеобразный "термоудар" по веществу.

Амплитуда возбуждаемых термоупругих напряжений σ связана с ангармоническими параметрами вещества: параметром Грюнайзена Γ , коэффициентом теплового расширения α , сжимаемостью k , модулем упругости E , скоростью звука s и коэффициентом Пуассона μ :

$$\sigma(x, t) = \frac{\Gamma}{2} \varepsilon(x - st), \quad (1)$$

где $\varepsilon(x)$ -плотность поглощенной энергии излучения [2,3]. Соотношение (1) справедливо в приближении мгновенного ввода энергии [3] при условии

$$[\Gamma(T + \Delta T) - \Gamma(T)] / \Gamma(T) \ll 1, \quad (2)$$

означающем, что радиационный перегрев вещества $\Delta T(x) = \varepsilon(x) / \rho c$, где ρ , c - плотность и удельная теплоемкость вещества, не приводит к существенному изменению параметра Грюнайзена (T - начальная температура вещества). Оценка масштаба температур Δ

T, в радиационно-акустических экспериментах дает $\Delta T \sim 10^{-4} \dots 10^{-1}$ K для переносов $10^9 \dots 10^{12}$ релятивистских электронов/см², характерных для современных линейных ускорителей. Изменяя в ходе эксперимента от импульса к импульсу температуру образца T, по амплитуде возбуждаемой упругой волны можно определить зависимость $\Gamma(T) = \sigma(T)/\varepsilon$, а по времени прихода t импульса в точку детектирования x - зависимость $s(T) = x/t(T)$.

На пучке электронов с энергией $E_e = 5 \dots 25$ МэВ, числом частиц в импульсе $10^9 - 10^{10}$, длительностью импульса 10^{-6} с, диаметром $D = 1^{-4}$ см изучалась температурная зависимость амплитуды термоупругой волны $\sigma(T)$, возбуждаемой пучком в материалах в области структурных ФП: гадолинии (ФП «ферро-парамагнетик»), сплавах с эффектом памяти формы (TiNi, TiNiCu, TiNiHf, CuAlNi, TiH-I (ФП «мартенсит-аустенит»); горячепрессованной ВТСП-керамике YBa2Cu3O7- δ (ФП в сверхпроводящем состоянии). Исследованные образцы представляли собой стержни диаметром $d = 0,2 \dots 0,4$ см и длиной $L \gg d$.

$$d \left(\frac{\partial E}{\partial x} \right) \ll E_e$$

Выполнение условий $d + stv \ll D$, а также условия, что радиационный перегрев вещества $\Delta T = 10^{-3} - 10^{-2}$ K за один импульс не приводит к существенному изменению исследуемых величин $\Gamma(T)$, $s(T)$ и др., обосновывало применимость приближения тонкого стержня и соотношения линейной теории упругости [4] для описания акустического от-

$$\frac{\partial E}{\partial x}$$

клика мишени ($\frac{\partial E}{\partial x}$ - удельные потери электрона). Используя связь между напряжением σ и смещением

$$E \left(\frac{\partial U}{\partial x} - \frac{\alpha \varepsilon}{3\rho c} \right)$$

U в тонком стержне $\sigma =$

$$\rho \frac{\partial^2 U}{\partial t^2} = - \frac{\partial \sigma}{\partial x}$$

уравнение движения среды получаем для нахождения напряжений в мишени уравнение:

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial t^2} - \frac{E}{\rho} \frac{\partial^2 \sigma}{\partial x^2} = \frac{\alpha E}{3\rho c} * \frac{\partial^2 \varepsilon(x,t)}{\partial t^2} \quad (3)$$

Решение задачи Коши с нулевыми начальными условиями имеет вид:

$$\sigma \left(t - \frac{x}{s} \right) = \frac{\gamma}{2} \int_0^{\infty} \frac{\partial \varepsilon(y, t - (x-y)/s)}{\partial t} dy, \quad (4)$$

где $\gamma = \Gamma(1 - 2\mu)$ - коэффициент генерации.

В приближении мгновенного энерговыделения

$$\sigma \left(t - \frac{x}{s} \right) = \frac{\gamma(T)}{2} \varepsilon(x - st) \quad (5)$$

Изменяя в ходе эксперимента температуру образца T, можно определить зависимость $\gamma(T) = -2\sigma(T)/\varepsilon$, $s(T)$, $E(T)$. Воспользовавшись

данными по $\mu(T)$, можем получить зависимость $\Gamma(T)$.

На рис.1 представлены зависимости $\gamma(T)$ и $E(T)$ для сплава-TiNi. Гистерезисный характер зависимостей (направления изменений температур определены стрелками) указывает на двухфазность

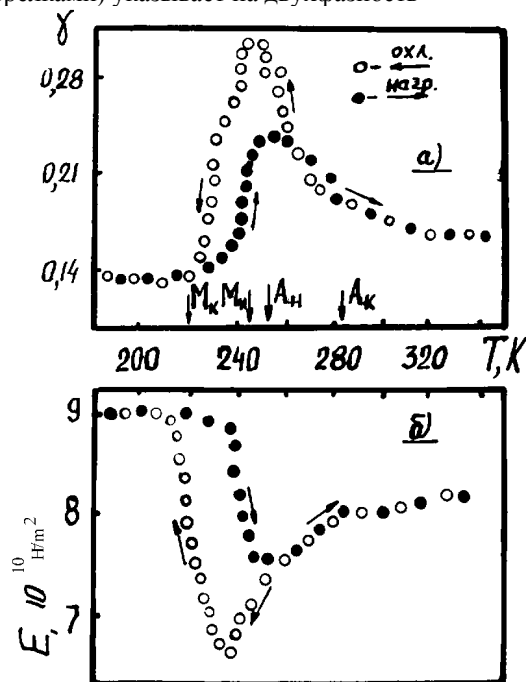


Рис.1. Зависимость коэффициента генерации (а) и модуля упругости (б) от температуры для сплава TiNi

(аустенит, мартенсит) материала в области мартенситного фазового перехода (МФП), что характерно для ФП 1-го рода. Температуры M_n, M_k соответствуют температурам начала и конца прямого, а A_n и A_k - обратного МФП. В области температур M_n и A_n модуль упругости $E(T)$ становится минимальным по значению, что связано с появлением "мягких мод" в процессе ФП. Установлено, что форма петли гистерезиса чувствительна к изменению концентрации составляющих элементов (Ti, Ni) и к легирующим добавкам (Cu, Hf, Fe и др.). Температуры M_n, M_k, A_n, A_k и положение петли гистерезиса относительно температурной оси при повторных термоциклированиях зависят от режима термообработки сплавов. Изменение петли гистерезиса $\gamma(T)$ при повторных термоциклированиях характеризует степень фазового наклепа при МФП.

При насыщении сплавов TiNi, TiNiCu, TiH-I водородом H₂ или дейтерием D₂ происходит более сильное "смягчение" решетки и сдвигка гистерезисной кривой $\gamma(T)$ по температурной оси на ± 30 K, в зависимости от концентрации H₂ и D₂. Наводороживание производилось в режиме, обеспечивающем обратимое со временем (~20 ч) изменение зависимостей $\gamma(T)$ и $E(T)$. Радиационно-акустические измерения позволяют контролировать водородный наклеп и гидридообразование, сопровождающие необратимые структурные изменения металлов и сплавов, находя-

щихся в водородосодержащих средах.

Гистерезисные зависимости $\gamma(T)$ и $E(T)$ наблюдаются во всех исследованных сплавах с эффектом памяти формы в области МФП. Характерной особенностью для монокристаллического образца CuAlNi является изменение знака параметра генерации $\gamma(T)$ при обратном МФП в области температуры $T \cong A_s$, что соответствует изменению полярности термоакустического импульса $\sigma(T)$.

Измерения $\Gamma(T)$ гадолиниевого образца в области ФП ($T_k=290$ К) показали отсутствие гистерезиса (рис.2,а), что характерно для ФП 2-го рода. Температуре ФП соответствует острый минимум $\Gamma(T)$, при переходе через точку $T=332$ К амплитуда $\sigma(T)$ меняет фазу, не обращаясь в нуль (см. рис.2,б).

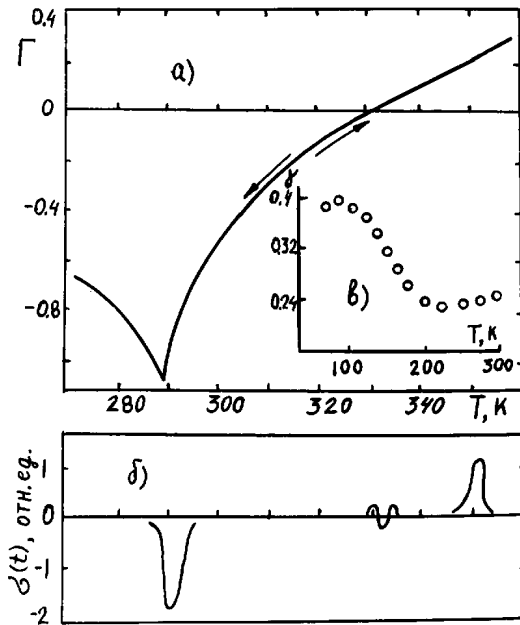


Рис.2. Температурные зависимости коэффициента Грюнрайзена (а) и амплитуды термоупругих напряжений (б) для гадолиния; коэффициента генерации (в) для ВТСП-керамики

Для ВТСП-керамики (см. рис.2,в) установлено наличие максимума зависимости $\gamma(T)$ в области температуры сверхпроводящего ФП ($T_k=92$ К).

Радиационно-акустические исследования позволяют измерять термоакустические и теплофизические характеристики стабильных фаз и метастабильных состояний как структурных фазовых переходов типа "solid-solid", так и фазовых переходов с изменением агрегатного состояния типа "solid-liquid".

Такие измерения были проведены на галлии и сплаве Вуда, при этом пучок использовался не только для осуществления термоудара по веществу, а и как прецизионный нагреватель, изменяющий внутреннюю энергию вещества в ходе эксперимента. Для галлия и сплава Вуда параметр генерации $\gamma_{solid} \gg \gamma_{liquid}$.

Если условие (2) не выполняется, то связь между амплитудой упругой волны σ и плотностью поглощенной энергии ϵ приобретает нелинейный характер. Такая ситуация может наблюдаться:

а) когда температура вещества T близка к нулю

параметра Грюнрайзена $\Gamma(T_0)$; $\Gamma(T_0)=0$;

б) когда начальная температура мишени T резко неоднородна: $T=T(x)$;

в) при сильном радиационном нагреве мишени, например, при взаимодействии с импульсными сверхточными РЭП с плотностью электронов $\sim 10^{15} \dots 10^{16}$ см⁻² за импульс. Эффективные перегревы вещества составляют $\Delta T = 10^2 \dots 10^3$ К.

Аналогичные условия реализуются в треках тяжелых ионов и термических пиках нейтронов. Возбуждаемые при этом механические напряжения еще далеки от нелинейного предела $\sigma \sim \rho s^2 \sim 10^{11}$ нейтр./м² (ρ -плотность вещества), однако при их расчете необходимо учитывать изменение термоупругих характеристик вещества в процессе одиночного облучения. Во всех этих случаях оказывается возможным определить параметр Грюнрайзена Γ как функцию температуры T (плотности поглощенной энергии ϵ) по амплитуде возбуждаемого акустического импульса $\sigma(t)$ и известной зависимости $\epsilon(x)$ в результате одного измерения. Решение уравнения термоакустики [3], обобщенное на случай $\Gamma = \Gamma(\epsilon) \neq \text{const}$, для одномерного поля поглощенной энергии имеет вид:

$$\sigma \left(t - \frac{x}{s} \right) = \frac{1}{2} \int_0^{\epsilon(x-st)} \Gamma(\epsilon) d\epsilon,$$

при $\tau_e \ll D/s$,

откуда $\Gamma(\epsilon)$ непосредственно выражается через измеряемые величины

$$\Gamma(\epsilon) = 2 \frac{\partial \sigma}{\partial t} / \frac{\partial \epsilon}{\partial t},$$

где $0 < \epsilon < \epsilon_{\text{max}}$. Здесь ϵ_{max} - максимальная плотность поглощенной энергии в зоне взаимодействия излучения с веществом, имеющей диаметр D , τ_e - длительность импульса излучения.

Предлагаемый метод определения зависимости $\Gamma = \Gamma(\epsilon)$ эффективен, если при однократном облучении реализуется широкий диапазон плотностей энергии $0 \leq \epsilon \leq \epsilon_{\text{max}}$. С этой точки зрения перспективным представляется использование сверхточных РЭП с плотностью потока электронов в импульсе $J \sim 10^{13} - 10^{16}$ см⁻². Предельно допустимые значения ϵ_{max} (и, следовательно, предельно допустимые значения $J = \epsilon_{\text{max}} / \frac{\partial E}{\partial x}$, где

$\frac{\partial E}{\partial x}$ - ионизационные потери электронов) определяются, как правило, прочностью твердого тела на разрыв σ_b исследуемого материала и (при наличии у образца свободной границы) находятся из уравнения

$$\frac{1}{2} \int_0^{\epsilon_{\text{max}}} \Gamma(\epsilon) d\epsilon = \sigma_b. \quad (6)$$

Определенный таким образом параметр Грюнрайзена $\Gamma(\epsilon)$ является динамической характеристикой и не совпадает с параметром $\Gamma_{\text{ст}}$, определенным в статических измерениях. Сравнение этих двух величин позволяет получить информацию о релаксационных процессах в области фазовых переходов.

При радиационно-стимулированном ФП в кон-

денсированное состояние с другой плотностью для параметра генерации получено следующее обобщение [5]:

$$\Gamma_{eff}(\epsilon) = \Gamma(\epsilon) + \left[\frac{k\nu}{\rho q} - \Gamma(\epsilon) \right] * \theta(\epsilon - \epsilon_f)$$

(7)

где ϵ_f - плотность поглощенной энергии, при которой начинается ФП; q - удельная теплота ФП; ν - удельное изменение объема при ФП; ρ , c , k - плотность, удельная теплоемкость и модуль всестороннего сжатия вещества. На рис.3 приведены результаты расчета амплитуд импульсов напряжений σ , возбуждаемых при импульсном облучении алюминиевой (кривая 1) и галлиевой (кривая 2) мишеней, находящихся вблизи точек плавления: $T_0 = T_f$. Пунктирной линией показано распределение поглощенной энергии $\epsilon(x)$.

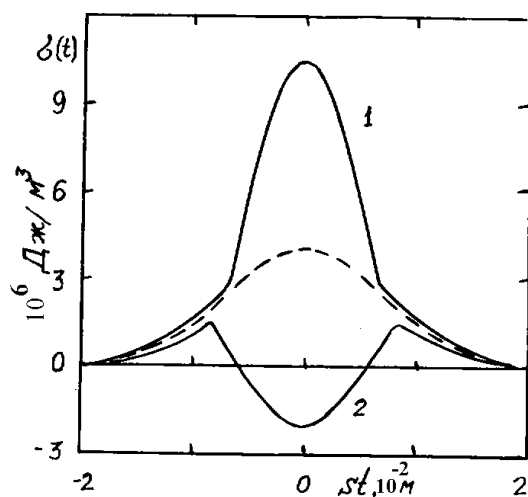
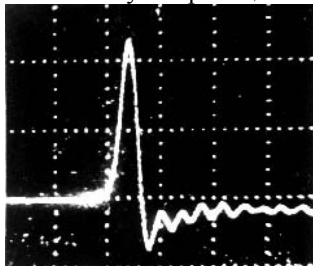
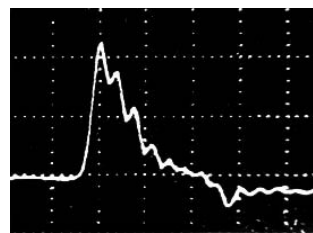


Рис.3. Расчетные кривые амплитуд импульсов термоупругих напряжений, возбуждаемых РЭП, для алюминиевой (1) и галлиевой (2) мишеней

Из рисунка видно, что возбуждаемые акустические импульсы по форме качественно отличаются от профилей поглощенной энергии. Изломы кривых напряжений соответствуют границам области ФП.



а



б

Рис.4. Осциллограммы акустических импульсов, возбуждаемых сильноточным РЭП в латуни (а) и титане (б)

Таким образом, по виду импульса акустических напряжений возможно диагностирование фазового состояния вещества.

Использование при радиационно-термической обработке металлов импульсных сильноточных РЭП позволяет осуществлять радиационно-акустический контроль над характеристиками и фазовым состоянием материала мишени непосредственно в процессе обработки. На рис.4,а, 4,б приведены осциллограммы акустических импульсов, зарегистрированных в латуни (см. рис.4,а) и титане (см. рис.4,б) в процессе взаимодействия с РЭП

($E \sim 0,5$ МэВ, $J \sim 10^{16}$ электрон/см², $\tau_e \sim 5 \cdot 10^{-6}$ с). Форма акустического импульса характеризует фазовое состояние мишени: испарение в латуни и плавление в титане.

Появление в импульсном режиме облучения наряду с нагревом дополнительного фактора воздействия на материал - термоакустических напряжений - позволяет (в зависимости от соотношения между длительностью воздействия излучения τ_e и временем акустической релаксации зоны взаимодействия $\tau_s = D/s$, где D - диаметр РЭП) кратковременно реализовать то или иное состояние материала в переменных "давление-температура".

Принимая для оценки термоупругие константы материала постоянными, получаем для перегретой температуры ΔT , механических напряжений σ и времени их действия t_s следующие приближенные выражения:

$$\Delta T = \epsilon / \rho c, \sigma = \frac{\Gamma \epsilon}{1 + s \tau_e / D}, t_s = \tau_e + D/s$$

Варьируя временем накачки τ_e и плотностью поглощенной энергии ϵ , можно существенно расширить возможности радиационной термической обработки.

ЛИТЕРАТУРА

1. И.А.Боржковский, В.Д.Воловик и др. Возбуждение ультразвуковых волн при прохождении быстрых электронов через металл // Письма в ЖЭТФ. 1971, т.13. в.10, с.546-549.
2. F.V.McLean, R.V.Oswald Jr., D.R.Schallhorn, L.D.Buxton. Temperature Dependence of Dynamic Response of Si, Ge and InSb to a Pulsed Electron Beam // J. Appl. Phys. 1971, v.42, N9, p.3474-3478.
3. И.И.Залюбовский, А.И.Калиниченко, В.Т.Лазурик.

Введение в радиационную акустику. Харьков:
«Вища школа». 1986, 167с.
4.Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц. *Теория упругости.* М.:
«Наука», 1965.

5.А.И.Калиниченко, Г.Ф.Попов //Тезисы доклада VII
Всесоюзного симпозиума по сильноточной электро-
нике, ч.III, Томск. 1988, с.247-249.