

Влияние пластической деформации на форму и параметры низкотемпературного пика внутреннего трения в ниобии

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,
Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47
E-mail: palval@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 28 января 1999 г.

В области умеренно низких температур изучена температурная зависимость декремента продольных колебаний на частотах 78 и 363 кГц в поликристаллическом ниобии чистотой $RRR = 60$. Зарегистрирован пик внутреннего трения, локализованный в окрестности температуры 200 К. Температура пика, его высота и ширина заметно изменялись при изменении частоты колебаний, а также вследствие изменений дефектной структуры под действием термоциклирования, пластической деформации, длительного низкотемпературного отжига. Показано, что данный пик поглощения обусловлен взаимодействием упругих колебаний образца с системой однотипных термически активированных релаксаторов, имеющих в достаточно совершенном кристалле энергию активации 0,15 эВ и частоту попыток $1 \cdot 10^{10} \text{ с}^{-1}$. Развита теория, позволившая описать изменение формы и параметров пика внутреннего трения вследствие статистического разброса значений энергии активации релаксаторов.

В області помірно низьких температур вивчено температурну залежність декремента поперечних коливань на частотах 78 і 363 кГц в полікристалічному ніобії чистотою $RRR = 60$. Зареєстровано пік внутрішнього тертя, локалізований поблизу температури 200 К. Температура піка, його висота і ширина помітно змінювались при зміні частоти коливань, а також внаслідок змін дефектної структури зразка під впливом термоцикування, пластичної деформації, довгострокового низькотемпературного відпалу. Показано, що даний пік поглинання обумовлено взаємодією пружних коливань зразка з системою однотипних термічно активованих релаксаторів, котрі мають в досить досконалих зразках енергію активації 0,15 еВ та частоту спроб $1 \cdot 10^{10} \text{ с}^{-1}$. Розвинуто теорію, яка дозволила описати зміни форми і параметрів піка внутрішнього тертя внаслідок статистичного розкиду значень енергії активації релаксаторів.

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 многократно регистрировались пики механической релаксации, температура локализации которых T_p возрастала от 90 до 200 К при изменении частоты колебаний в широком интервале от инфразвуковых частот порядка 10^{-3} Гц до ультразвуковых частот порядка 10^5 Гц [1–12]. В отдельных публикациях отмечалось, что пластическая деформация образцов перед проведением акустических измерений приводила к увеличению высоты и ширины пиков, а также к сдвигу T_p в сторону высоких температур.

Данные о зависимости температур локализации пиков T_p от циклической частоты колебаний ω систематизированы на рис. 1. Видно, что в первом приближении обсуждаемые пики внутреннего трения соответствуют некоторому термически активированному релаксационному процессу с экспоненциально зависящим от температуры T временем релаксации

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

где U — энергия активации; τ_0 — период попыток; k — постоянная Больцмана. Полный набор экспериментальных данных, приведенных на рис. 1, соответствует условию релаксационного

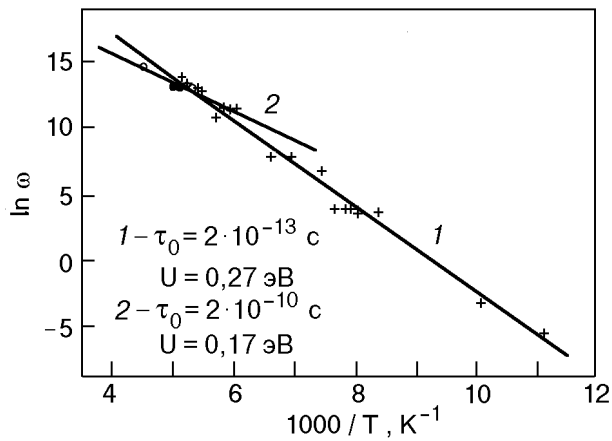


Рис. 1. Активационный график для совокупности пиков внутреннего трения ниобия, наблюдавшихся в экспериментах различных исследователей в области умеренно низких температур: данные предыдущих исследований (+); данные настоящей работы (○, ●); U, τ_0 — параметры прямых, проведенных через соответствующие совокупности точек с минимальными среднеквадратичными отклонениями.

резонанса $\omega\tau(T_p) = 1$ при выборе характерных значений энергии активации $U \approx 0,27$ эВ и периода попыток $\tau_0 \approx 10^{-13}$ с (прямая 1 на рис. 1). Однако довольно большой разброс точек, по-видимому, частично обусловленный различиями в структуре образцов, приводит к значительной неопределенности при определении эмпирических значений параметров релаксационного процесса и затрудняет его микроскопическую интерпретацию.

Можно утверждать, что природа данного релаксационного процесса до сих пор остается невыясненной. Более того, нет уверенности, что все показанные на рис. 1 данные соответствуют единственному релаксационному процессу, а не являются наложением нескольких процессов с различными активационными параметрами [13]. Нет также достаточно детально разработанной теории, способной описать влияние на форму и параметры релаксационного пика внутреннего трения структурных неоднородностей, в частности статистического ансамбля дислокаций и обусловленных ими случайных полей внутренних напряжений, вводимых в кристаллические образцы при пластической деформации. Известные нам теоретические разработки этой проблемы посвящены в основном анализу влияния случайного разброса значений энергии активации U и предэкспоненциального фактора τ_0 или времени релаксации τ в целом на ширину пика (см., например, [14,15]). При этом за пределами рассмотрения остаются сдвиг температуры пика T_p , изменение его высоты и асимметрия пика, тогда как все эти эффекты отчетливо проявляются в экспериментах.

В настоящей работе получены дополнительные экспериментальные данные о внутреннем трении поликристаллического ниобия в области умеренно низких температур. В наших экспериментах наблюдался пик внутреннего трения в области температур порядка 200 К при использовании продольных колебаний ультразвукового диапазона с частотами $\omega/2\pi = 78$ и 363 кГц. Изучено влияние предварительной пластической деформации и отжига образцов на температуру, высоту и форму этого пика. Предложена также теоретическая интерпретация наблюдаемых закономерностей, которая базируется на предположениях о статистическом характере параметров элементарных релаксаторов, ответственных за данный пик, и о влиянии дислокаций на дисперсию энергии активации и объемную плотность релаксаторов.

2. Методика эксперимента и результаты измерений

Образец был вырезан из поликристаллического ниобия с помощью электроискровой резки, затем притерт на абразивных порошках до достижения требуемой формы и геометрических размеров и подвергнут химической полировке для удаления поврежденных при механической обработке приповерхностных слоев. Окончательные размеры образца составляли $3 \times 3 \times 21$ мм. Размер зерна в образце не превышал 0,1 мм, что было значительно меньше поперечного сечения образца. Исходная плотность дислокаций составляла $\sim 10^6$ см⁻².

В качестве интегральной меры чистоты образца служила приведенная величина остаточного электросопротивления $RRR = R_{300}/R_0 \approx 60$, для получения которой в интервале 2–300 К измерялась температурная зависимость электросопротивления образцов. Полученные 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.

Для установления связи акустических свойств ниобия с дислокационной структурой образцов и дислокационными процессами в образец вводились свежие дислокации путем предварительного деформирования при комнатной температуре кручением вокруг продольной оси до величины остаточной пластической деформации около 5%. После деформации образец снова притирался для восстановления формы параллелепипеда и подвергался химической полировке. Измерения выполнялись как сразу после деформации, так и

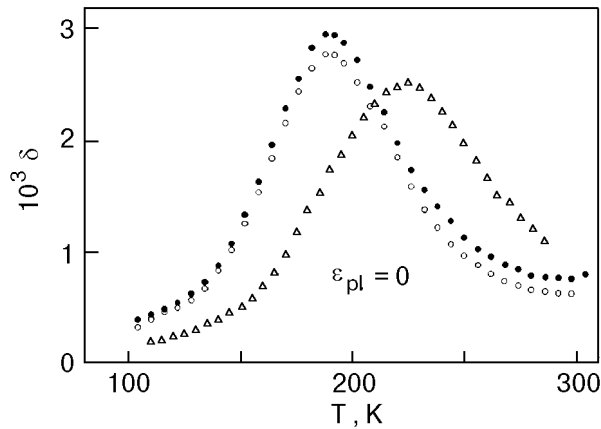


Рис. 2. Пик внутреннего трения в поликристаллическом недеформированном ниобии и его изменение при увеличении амплитуды ϵ_0 и частоты $\omega/2\pi$ акустических колебаний: $\omega/2\pi = 78$ кГц, $T_p = 190$ К, $\epsilon_0 = 3 \cdot 10^{-8}$ (○) и $3 \cdot 10^{-5}$ (●); $\omega/2\pi = 363$ кГц, $T_p = 225$ К, $\epsilon_0 = 3 \cdot 10^{-8}$ (Δ).

через время порядка 1 года, что позволяло регистрировать изменение акустических свойств образца в результате длительной выдержки при комнатной температуре.

Акустические измерения проводились методом двойного составного вибратора [16,17]. В образце возбуждались продольные стоячие волны с частотами $\omega/2\pi = 78$ и 363 кГц. Амплитуда ультразвуковой деформации ϵ_0 изменялась в интервале $3 \cdot 10^{-8} < \epsilon_0 < 3 \cdot 10^{-5}$. Измерялись температурные зависимости логарифмического декремента колебаний δ в области температур 90–310 К при охлаждении и отогреве образцов со скоростью примерно 1 К/мин.

На рис. 2 представлены температурные зависимости декремента $\delta(T)$ при частоте колебаний 78 кГц для двух предельно отличающихся амплитуд ультразвуковой волны: $\epsilon_0 = \epsilon_{0\min} = 3 \cdot 10^{-8}$ и $\epsilon_0 = \epsilon_{0\max} = 3 \cdot 10^{-5}$. Наблюдается широкий ярко выраженный пик внутреннего трения при $T \approx 190$ К. Увеличение амплитуды ультразвука на три порядка приводит к незначительному повышению $\delta(T)$ во всем изученном интервале температур, в результате высота пика несколько возрастает. При этом форма пика и его положение на температурной оси остаются практически неизменными. Эти измерения позволяют предположить, что пик является следствием линейного резонансного взаимодействия упругих колебаний с системой однопериодных элементарных релаксаторов. Повышение частоты ультразвука приводит к смещению температуры пика T_p в область более высоких температур.

Заметно изменить дислокационную структуру изучаемого образца можно несколькими способами. Наиболее эффективный способ — предвари-

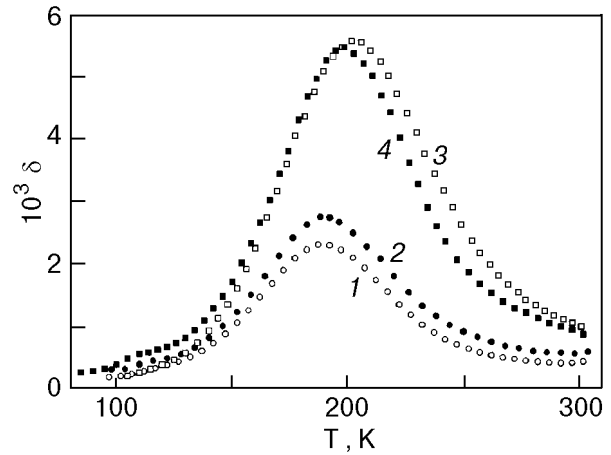


Рис. 3. Влияние изменений дефектной структуры образца на пик внутреннего трения ниобия, зарегистрированный в данной работе: недеформированный образец при однократном термоциклировании (○); недеформированный образец при повторном термоциклировании (●); непосредственно после пластической деформации (□); пластически деформированный образец после выдержки при комнатной температуре в течение года (■).

тельная пластическая деформация на достаточно большую величину, приводящая к увеличению плотности дислокаций. Второй способ — длительный отжиг ранее деформированных образцов, приводящий, как правило, к уменьшению плотности дислокаций. Увеличить плотность дефектов можно также многократным термоциклированием образца в широком интервале низких температур при достаточно большой скорости изменения температуры; при этом роль внешнего деформирующего напряжения играют возникающие в образце термоупругие напряжения. Влияние всех трех названных выше факторов на изучаемый пик внутреннего трения иллюстрирует рис. 3. На этом рисунке показаны температурные зависимости декремента колебаний $\delta(T)$ на частоте $\omega/2\pi = 78$ кГц в четырех случаях: в процессе однократного термоциклирования недеформированного образца в интервале температур 300–6–300 К со скоростью 1 К/мин; в процессе повторного термоциклирования с той же скоростью; непосредственно после деформирования при комнатной температуре до величины остаточной деформации $\epsilon_{pl} = 5\%$; после выдержки деформированного образца при комнатной температуре в течение года.

Структурные изменения, вызванные как действием термоупругих напряжений, так и внешних напряжений, приводят к качественно эквивалентным изменениям формы и параметров пика:

- высота пика $\delta_p = \max \delta(T)$ возрастает;
- положение пика на температурной оси T_p смещается в сторону высоких температур;
- ширина пика возрастает;

– увеличивается асимметрия пика за счет подъема над фоном или увеличения протяженности его высокотемпературного крыла;

– происходит слабое, но заметное увеличение фона поглощения в области локализации пика.

Длительный низкотемпературный отжиг деформированного образца приводит к результату противоположного знака по всем перечисленным выше признакам.

Полученные в наших экспериментах значения T_p на активационном графике (рис. 1) достаточно хорошо (с точностью до разброса) совмещаются с массивом точек, полученных в других работах. Однако самостоятельное использование этих значений для определения параметров релаксационного процесса дает значения $U \approx 0,17$ эВ и $\tau_0 \approx 2 \cdot 10^{-10}$ с (прямая 2 на рис. 1), существенно отличающиеся от значений, характерных для всего массива данных о зависимости $T_p(\omega)$. Данное обстоятельство еще раз подчеркивает трудности, возникающие при использовании активационного графика для микроскопической интерпретации обсуждаемого релаксационного резонанса.

Естественно предполагать, что одной из возможных причин разброса точек на рис. 1 и отмеченной неоднозначности эмпирических значений параметров U и τ_0 является влияние на локальные значения этих параметров в объеме образца случайных неоднородностей структуры, в первую очередь дислокаций. Поэтому первым шагом на пути преодоления указанных трудностей должен быть анализ особенностей релаксационного резонанса, которые обусловлены статистическим характером параметров элементарных релаксаторов в реальных кристаллах.

3. Теоретический анализ влияния статистического разброса энергии активации элементарных релаксаторов на условия релаксационного резонанса

В данной публикации мы не будем рассматривать конкретные микроскопические модели элементарного релаксатора, взаимодействие с которым упругих колебаний порождает обсуждаемый пик внутреннего трения. Ограничимся только несколькими замечаниями по этому вопросу.

По совокупности основных свойств пика его можно отнести к так называемым пикам Бордони, которые наблюдаются в области низких температур при изучении целого ряда ГЦК и ОЦК металлов (в ОЦК металлах эти пики называют α - и γ -пиками [8,15,18–20]). Характерные величины параметров U и τ_0 , а также сильная зависимость высоты пика δ_p от плотности дислокаций (ро-

стовых или вводимых в результате предварительной пластической деформации и исчезающих в результате отжига) позволяет рассматривать в качестве наиболее вероятных микроскопических моделей релаксатора два элементарных дислокационных процесса: термически активированное зарождение парных дислокационных кинков на прямолинейных сегментах дислокаций, расположенных в долинах рельефа Пайерлса первого рода, а также термоактивированную диффузию одиночных кинков вдоль дислокационных линий через барьеры Пайерлса второго рода. Для нас важно, что элементарный релаксатор такого типа сильно локализован в объеме кристалла (в области с размерами порядка 10 – 10^2 межатомных расстояний) и в достаточно совершенном кристалле ему можно сопоставить три параметра, величины которых в первом приближении определяются энергетическими и геометрическими параметрами бездефектного кристалла: энергию активации U_0 , период попыток τ_0 и характерный элементарный вклад в декремент колебаний Δ_0 . Если обозначить символом C_r относительную объемную концентрацию таких релаксаторов, взаимодействующих с рассматриваемой колебательной модой образца, то выражение, определяющее их вклад в декремент колебаний в приближении линейного отклика имеет вид дебаевского пика:

$$\delta(T, \omega) = 2\delta_p \frac{\omega\tau(u_0)}{1 + \omega^2\tau^2(u_0)}, \quad (2)$$

где

$$\delta_p = C_r \Delta_0, \quad \tau(u_0) = \tau_0 \exp\left(\frac{U_0}{kT}\right).$$

Координата пика на оси температур $T_p^{(0)}$ определяется соотношениями

$$\omega\tau(u_0) = 1, \quad T_p^{(0)} = -\frac{U_0}{k \ln(\omega\tau_0)}. \quad (3)$$

Высота пика δ_p , естественно, пропорциональна как вкладу отдельного релаксатора Δ_0 , так и концентрации релаксаторов C_r .

Если в кристалле существует сложная система локальных структурных неоднородностей и действующих полей внутренних напряжений, обусловленных случайным распределением различных дефектов, то параметры элементарного релаксатора U_0 , τ_0 и Δ_0 приобретают в различных областях кристалла случайные добавки и вместо этих параметров следует рассматривать случайные величины и соответствующие им функции распре-

делений. Декремент колебаний макроскопического образца превращается при этом в некоторую сложную функцию $\bar{\delta}(T, \omega)$, получаемую статистическим усреднением выражения (2). Из структуры выражения (2) очевидно, что наиболее существенное влияние на температурную и частотную зависимость $\bar{\delta}(T, \omega)$ должно оказывать усреднение по распределению значений энергии активации и периода попыток. Поскольку время релаксации τ также становится случайной величиной, можно ввести функцию распределения для τ (так называемый релаксационный спектр) и усреднить дебаевский пик по этому распределению [15].

Феноменологическая теория механической релаксации в материалах со случайными структурными параметрами [15] в качестве основной задачи рассматривает подбор функции распределения для этих параметров, использование которых позволяет с желаемой степенью точности описать закономерности релаксации, регистрируемые в экспериментах. С точки зрения физики термически активируемых процессов, использующей для описания элементарного акта релаксации соотношение (1), целесообразно рассматривать в качестве исходных случайных параметров энергию активации и период попыток и искать функцию распределения для этих величин. Очевидно, что такая функция распределения будет определяться только структурой материала и не должна зависеть от температуры, а при вычислении $\bar{\delta}(T, \omega)$ будет использован явный вид температурной зависимости усредняемой функции. В противоположность этому, при подборе функции распределения для времен релаксации τ температура и структурные характеристики рассматриваются как формально эквивалентные параметры, от которых должна зависеть эта функция, что очевидным образом маскирует физическую роль температуры.

В данном исследовании мы не будем заниматься микроскопическим анализом релаксационных спектров, а, следуя феноменологическому подходу [15], будем искать функцию распределения, позволяющую адекватно описать основные особенности релаксационных свойств изучаемого материала (ниобия), зарегистрированные в эксперименте и описанные в предыдущем разделе. Специфика нашего анализа заключается в существенном использовании трех предположений. Во-первых, мы будем рассматривать только термически активированный релаксационный процесс и считать случайными величинами только структурные параметры, фигурирующие в соотношениях (1) и (2). Во-вторых, ограничимся рассмотрением области достаточно низких температур $kT \ll U_0$. И, наконец, будем считать, что

дисперсия D^2 энергии активации достаточно мала ($D \ll U_0$), т. е. ограничимся рассмотрением относительно слабых воздействий на структуру кристалла, приводящих к случайным изменениям исходного значения энергии активации. Сделанные предположения позволяют в первом приближении учитывать только статистический характер энергии активации и с экспоненциальной точностью пренебрегать дисперсией параметров Δ_0 и τ_0 .

Таким образом, принимая во внимание сделанные выше замечания, будем считать единственным случайным параметром задачи энергию активации элементарного релаксатора U . В качестве статистической характеристики этой величины введем функцию $P(U)$ – плотность вероятности значений U , заданную на интервале $(0, \infty)$ и удовлетворяющую условию нормировки

$$\int_0^{\infty} P(U) dU = 1. \quad (4)$$

При наличии статистического распределения значений энергии активации дебаевский пик (2) переходит в более сложную функцию $\bar{\delta}(T, \omega)$, определяемую выражением

$$\bar{\delta}(T, \omega) = 2 \Delta_0 C_r \int_0^{\infty} dU p(U) \frac{\omega \tau_0 \exp(U/kT)}{1 + \omega^2 \tau_0^2 \exp(2U/kT)}. \quad (5)$$

В качестве конкретного простейшего примера распределения $P(U)$ рассмотрим функцию вида

$$P(U) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}D} \left(\frac{U}{U_0} \right) \exp \left[-\frac{(U - U_0)^2}{2D^2} \right], \quad D \ll U_0. \quad (6)$$

Легко показать, что распределение квазигауссовского типа (6) с точностью до слагаемого порядка $\exp(-U_0^2/2D^2)$ удовлетворяет условию нормировки (4), а соответствующие ему среднее значение и дисперсия в первом приближении по D^2 равны

$$\bar{U} = \int_0^{\infty} UP(U)dU \cong U_0 + \frac{D^2}{U_0}, \quad (7)$$

$$\overline{(U - \bar{U})^2} \cong \overline{(U - U_0)^2} = \int_0^{\infty} (U - U_0)^2 P(U)dU \cong D^2.$$

При $D \rightarrow 0$ распределение (6) переходит в дельта-функцию Дирака $P(U) = \delta(U - U_0)$, что обеспечивает переход функции $\bar{\delta}(T, \omega)$ (5) в дебаевский пик (2) при малых значениях дисперсии. Вместе с тем увеличение параметра D , уширяя распределение (6) и смещая его максимум в сторону высоких энергий, приводит к уширению пика температурной зависимости усредненного декремента $\bar{\delta}(T, \omega)$ и смещению пика в сторону высоких температур. Отметим также, что асимметрия распределения (6) относительно значения U_0 , обусловленная множителем U в предэкспоненте, приводит к дополнительной асимметрии температурной зависимости $\bar{\delta}(T, \omega)$ относительно ее максимума*. Следовательно, использование функции распределения (6) при вычислении усредненного декремента колебаний $\bar{\delta}(T, \omega)$ (5) создает все необходимые предпосылки для интерпретации описанных в предыдущем разделе особенностей пика механической релаксации в поликристаллических образцах ниобия. В конечном итоге объяснение свойств пика сводится к естественному предположению о возрастании концентрации релаксаторов C_r и дисперсии энергии активации отдельного релаксатора D^2 с увеличением плотности структурных дефектов (например, дислокаций) при термоциклировании или пластической деформации и уменьшении этих параметров при отжиге образцов.

Так как подстановка (6) в (5) приводит к интегралу, вычислить который аналитическими методами не удастся, то справедливость приведенных выше утверждений целесообразно проиллюстрировать, воспользовавшись методами численного интегрирования. Чтобы привести интеграл к виду, удобному для численного интегрирования, перейдем к новой переменной интегрирования x и новому набору параметров задачи, определив их соотношениями:

$$\ln x = \frac{U}{kT}, \quad \theta = \frac{T}{T_p^{(0)}}, \quad \Omega = \frac{1}{\omega\tau_0}, \quad U_0 = kT_p^{(0)} \ln \Omega, \quad (8)$$

$$d = \frac{\sqrt{2}D}{kT_p^{(0)}} = \frac{\sqrt{2}D}{U_0} \ln \Omega.$$

Здесь введены безразмерная температура θ , обратная безразмерная частота Ω и безразмерная характеристика дисперсии d . В результате

таких замен усредненный декремент колебаний $\bar{\delta}(T, \omega)$ приобретает вид

$$\bar{\delta} = C_r \Delta_0 F(\theta, \Omega, d),$$

$$F = \frac{2\Omega\theta^2}{\sqrt{\pi}d \ln \Omega} \int_1^\infty dx \frac{\ln x}{x^2 + \Omega^2} \exp \left[- \left(\frac{\theta \ln x - \ln \Omega}{d} \right)^2 \right]. \quad (9)$$

Основной интерес для нас представляет вопрос о характере изменения температурной зависимости декремента колебаний (релаксационного пика на оси температур) при увеличении дисперсии энергии активации релаксаторов: отсутствие дисперсии отвечает пределу $d \rightarrow 0$, а относительно большая дисперсия задается неравенством $d \geq 1$. Отметим, что в реальных ситуациях $\ln \Omega = -\ln(\omega\tau_0) \geq 10$, поэтому наше исходное предположение о выполнении неравенства $D \ll U_0$ допускает рассмотрение неравенства $d > 1$. Выберем два характерных для ультразвуковых экспериментов значения параметра $\Omega = 10^4$ и 10^8 и рассмотрим температурную зависимость функции $F(\theta)$ для нескольких существенно различных значений параметра d . Численное интегрирование дает для функции $F(\theta, \Omega, d)$ серию кривых, показанных на рис. 4. При малых значениях d температурная зависимость функции $F(\theta, \Omega, d)$ имеет максимум в точке $\theta \approx 1$ и практически совпадает с дебаевским пиком (кривая 1 на рис. 4), а увеличение параметра d приводит к смещению пика в сторону высоких температур, уширению и увеличению его асимметрии. Для количественной характеристики уширения пика можно использовать параметры

$$T_h = T_p^{(+)} - T_p^{(-)}, \quad h = \frac{T_h}{T_p^{(0)}} = \theta_h^{(+)} - \theta_h^{(-)}, \quad (10)$$

где $\theta_h^{(+)}$ и $\theta_h^{(-)}$ — значения температуры, для которых $F(\theta^{(+)}) = F(\theta^{(-)}) = 0,5F(\theta_p)$, а θ_p — точка максимума функции $F(\theta)$. Характер изменения параметров пика θ_p и h с ростом d иллюстрирует рис. 5.

Графики функций $\theta_p(d, \Omega)$ и $h_p(d, \Omega)$, показанные на рис. 5, допускают простые аналитические аппроксимации, точность которых имеет величину порядка нескольких процентов:

* Асимметрию распределения $P(U)$ и функции $\bar{\delta}(T, \omega)$ можно изменять, выбирая другие степени переменной U в предэкспоненциальном множителе формулы (6).

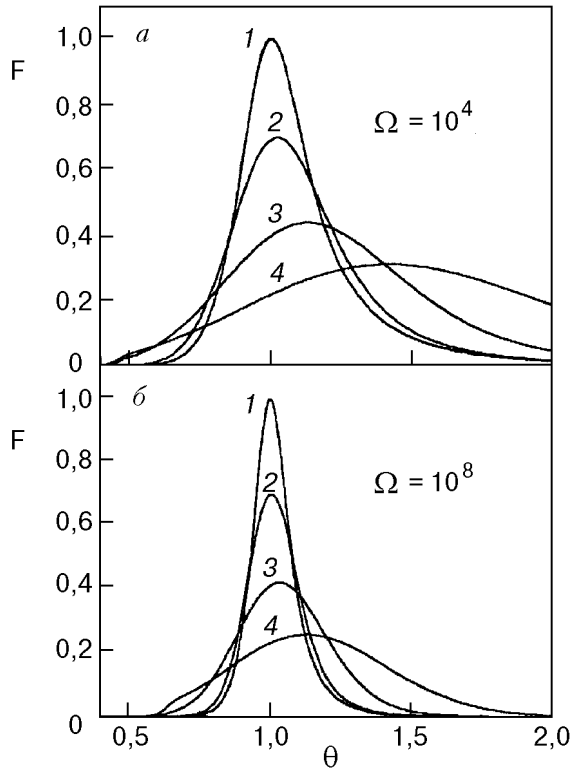


Рис. 4. Трансформация дебаевского пика при возрастании дисперсии энергии активации релаксатора: результат численного интегрирования в формуле (9) при существенно различных значениях частотного параметра Ω (10^4 (а) и 10^8 (б)) и значениях параметра дисперсии $d = 0$ (1); 1 (2); 2,5 (3); 5 (4).

$$\theta_p = 1 + 2 \left(\frac{d}{\ln \Omega} \right)^2, \quad (11)$$

$$h = \frac{2(1+d)}{\ln \Omega}. \quad (12)$$

Используя соотношения (8) и (10)–(12), легко получить систему двух уравнений, связывающих параметры теории U_0 , τ_0 и D с экспериментально измеряемыми величинами T_p и T_h :

$$\begin{aligned} U_0^2 + 4D^2 + kT_p U_0 (\ln \tau_0 + \ln \omega) &= 0; \\ U_0 - \sqrt{2} D (\ln \tau_0 + \ln \omega) - \frac{1}{2} kT_h (\ln \tau_0 + \ln \omega)^2 &= 0. \end{aligned} \quad (13)$$

Первое из этих уравнений удобно записать в виде соотношения, которому соответствует активационный график $\ln \omega - T_p^{-1}$:

$$\ln \omega = \ln \tau_0^{-1} - \frac{U_0^2 + 4D^2}{kU_0} \frac{1}{T_p}. \quad (14)$$

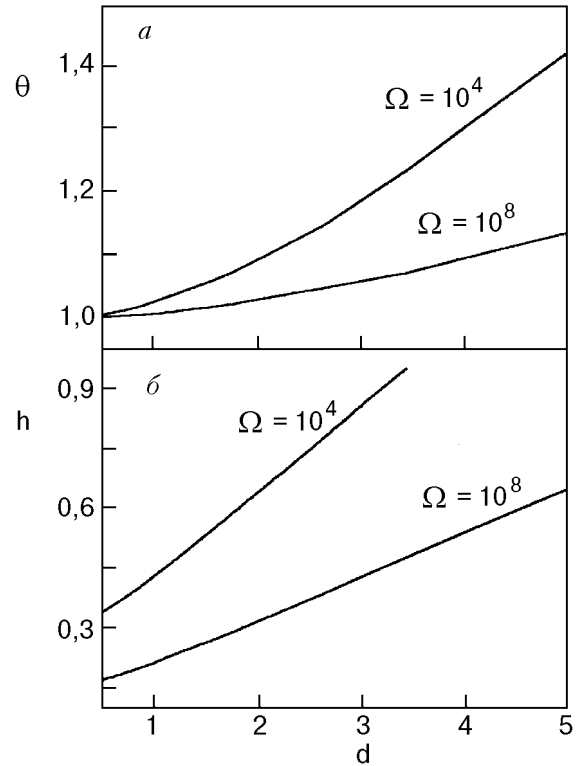


Рис. 5. Зависимости безразмерной температуры локализации θ_p (а) и ширины h (б) релаксационного пика от параметра дисперсии d , полученные в результате численного интегрирования в формуле (9).

Регистрируя зависимость $T_p(\omega)$ в достаточно широком интервале частот и построив активационный график, можно обычным способом получить эмпирические оценки для параметра τ_0 и эффективной энергии активации U_{eff} , роль которой играет множитель перед T_p^{-1} . Значения этих параметров можно также оценить, измеряя T_p для двух близких значений частот ω_1 и ω_2 :

$$\begin{aligned} \tau_0^{-1} &= \omega_0 \exp \left[T_p \left(\frac{\partial T_p}{\partial \ln \omega} \right)^{-1} \right] \cong \\ &\cong \omega_1 \exp \frac{T_p(\omega_2) \ln(\omega_2/\omega_1)}{T_p(\omega_2) - T_p(\omega_1)}, \end{aligned} \quad (15)$$

$$\begin{aligned} U_{\text{eff}} &= U_0 \left(1 + \frac{4D^2}{U_0^2} \right) = kT_p^2 \left(\frac{\partial T_p}{\partial \ln \omega} \right)^{-1} \cong \\ &\cong \frac{kT_p(\omega_1) T_p(\omega_2) \ln(\omega_2/\omega_1)}{T_p(\omega_2) - T_p(\omega_1)}. \end{aligned} \quad (16)$$

Отметим, что для соблюдения корректности процедуры определения τ_0 и U_{eff} следует исполь-

зовать эмпирическую зависимость $T_p(\omega)$, полученную при постоянном значении D , т. е. при неизменной структуре кристалла.

Уравнения (13) позволяют также находить эмпирические значения затравочной энергии активации U_0 и дисперсии D^2 , используя измерения температуры пика T_p и его ширины T_h при любом фиксированном значении частоты ω . С точностью до членов порядка $2(\ln \tau_0 \omega)^{-2} \ll 1$ решение системы уравнений (13) относительно U_0 и D имеет вид

$$U_0 = \frac{k(T_h^2 - T_p^2) \ln(\tau_0 \omega)}{T_p} + 2kT_h, \quad (17)$$

$$D = -\frac{k}{2\sqrt{2}} [T_h \ln(\tau_0 \omega) + 2T_p]. \quad (18)$$

В заключение данного раздела отметим, что при попытках использования формул (9) и (14)–(18) для интерпретации экспериментальных данных следует иметь в виду, что различные воздействия на кристалл, изменяющие статистические характеристики релаксаторов, в отдельных случаях могут также приводить к изменению концентрации релаксаторов C_r . Следствием этого может быть появление дополнительных особенностей в поведении высоты пика релаксации, отсутствующих на рис. 4, например, увеличение $\max \delta$ вместе со смещением пика в сторону высоких температур в тех случаях, когда увеличение C_r оказывается более значительным, чем убывание F .

4. Теория и эксперимент

Учитывая феноменологический характер предложенной теории, при количественном сравнении ее выводов с экспериментальными данными речь должна идти о корректном выборе функции распределения $P(U)$ и подборе значений параметров τ_0 , U_0 , D и $C_r \Delta_0$, позволяющих совместить температурные зависимости, показанные на рис. 2 и 3, с зависимостями, определяемыми формулами (9).

Выражение (9) описывает вклад в затухание упругих колебаний образца статистического ансамбля однотипных термически активированных релаксаторов с квазигассовской функцией распределения значений энергии активации (6). Это выражение способно учесть все основные особенности поведения изученного нами пика акустической релаксации в ниобии, рассмотренные в разд. 2, если принять естественное предположение, что термоциклирование и пластическая деформация образца увеличивают плотность струк-

турных дефектов, а вместе с этим дисперсию энергии активации D^2 и концентрацию C_r релаксаторов; тогда длительный отжиг должен уменьшать эти параметры.

Отдельная проблема, которая возникает при сравнении предложенной теории с экспериментом, — корректное вычитание фона поглощения для всех пиков на рис. 3. Учитывая малую величину и слабую температурную зависимость фона у основания пиков со стороны низких температур, можно на рис. 3 заменить фон в области пиков константами, величины которых определяются только структурным состоянием образцов, а в качестве таких констант использовать экспериментальные значения декремента δ при $T = 100$ К. Таким образом, речь будет идти о проверке применимости соотношения

$$\delta - \delta_{100\text{К}} = C_r \Delta_0 F(\theta, d, \Omega) \quad (19)$$

для описания экспериментальных данных, приведенных на рис. 2 и 3.

Приступая к анализу экспериментальных данных, необходимо в первую очередь рассмотреть смещение пика поглощения вдоль температурной оси при изменении частоты колебаний (рис. 2). Используя данные этого рисунка и формулу (15), получим эмпирическую оценку для одного из главных микроскопических параметров изучаемого релаксационного процесса — частоты попыток τ_0^{-1} , значение которого приведено в последней строке таблицы.

Таблица

Зависимость параметров пика поглощения на частоте колебаний $\omega/2\pi = 78$ кГц от структурного состояния образца и эмпирические значения параметров теории

Параметры пика	Структурное состояние образцов			
	1	2	3	4
T_p , К	190	191	202	198
T_h , К	66	66	75	65
$[\delta(T_p) - \delta(100\text{ К})] \cdot 10^3$	2,0	2,3	5,2	4,8
$(C_r \Delta_0) \cdot 10^3$	2,54	2,97	7,02	5,92
d	0,69	0,70	0,87	0,58
$D, 10^{-3}$ эВ	7,79	7,91	9,83	6,55
U_{eff} , эВ	0,152	0,152	0,153	0,151
U_0 , эВ	0,15			
τ_0 , с	$1 \cdot 10^{-10}$			

Примечание: Нумерация структурных состояний образцов соответствует нумерации на рис. 3.

Для получения эмпирических оценок «затраченной» энергии активации U_0 и параметра D , характеризующего статистический разброс энергии активации в том или ином структурном состоянии образца, следует воспользоваться данными, приведенными на рис. 3. Для каждого из пиков на рис. 3 можно оценить температуру пика T_p и его ширину T_h и подставить эти значения в формулы (17), (18). Однако точность таких оценок не слишком высока в силу достаточно большой неопределенности значений T_h . Чтобы повысить точность оценок параметров U_0 и D , а также убедиться в количественном соответствии экспериментальных данных формуле (19), можно использовать возможности численного компьютерного анализа. Отталкиваясь от грубых оценок T_p и T_h , полученных из рис. 3, и вычисленных с их помощью значений U_0 и D , можно подобрать уточненные значения параметров U_0 , D и $C_r \Delta_0$, позволяющие с достаточно высокой точностью совместить экспериментальные точки на зависимостях $\delta(T)$ с графиками функции (19). Возможность такого совмещения иллюстрирует рис. 6, а соответствующие подгоночные значения параметров теории приведены в нижних строчках таблицы. На рис. 6 экспериментальные точки рис. 3 приведены к шкале безразмерной температуры $\theta = (kT \ln \Omega)/U_0$, а значения U_0 , D и $C_r \Delta_0$ выбраны так, чтобы максимально приблизить к экспериментальным точкам теоретические графики в их центральных частях. Отметим, что отклонения экспериментальных точек от графиков на крыльях пиков, вероятней всего, связаны с погрешностями, допускаемыми вследствие использования предельно упрощенной процедуры вычитания фонового поглощения.

Приведенные в таблице значения параметров $C_r \Delta_0$ и D свидетельствуют о том, что при термоциклировании и пластической деформации образцов объемная плотность элементарных релаксаторов и дисперсия их энергии активации возрастают, тогда как отжиг образцов сопровождается небольшим уменьшением плотности релаксаторов и достаточно большим уменьшением дисперсии энергии активации.

Отметим, что приведенные в таблице уточненные значения активационных параметров обсуждаемого пика несколько отличаются от первоначальных более грубых оценок, полученных с помощью активационного графика (прямая 2 на рис. 1). Значительно сильнее отличаются эти значения от средних значений, характерных для всей совокупности пиков, наблюдавшихся ранее при изучении внутреннего трения ниобия в области умеренно низких температур (прямая 1 на рис. 1).

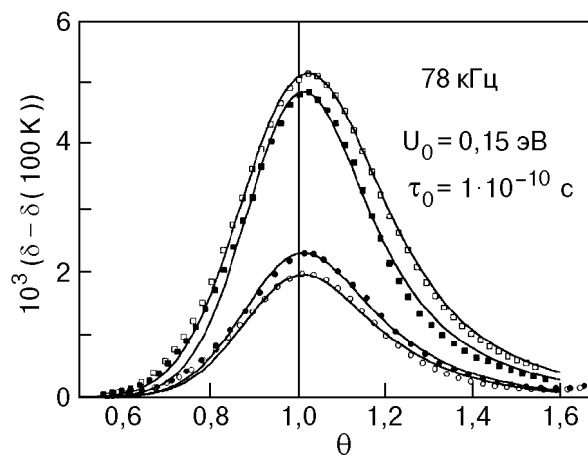


Рис. 6. Сопоставление экспериментальных данных о температурных зависимостях декремента колебаний для различных структурных состояний образца (см. рис. 3) с теоретической зависимостью (19), построенной для совокупности специально подобранных значений параметров U_0 , τ_0 , D и $C_r \Delta_0$, приведенных в таблице.

ренно низких температур (прямая 1 на рис. 1). Данное обстоятельство свидетельствует о том, что в этой температурной области в ниобии возможно протекание нескольких термически активированных релаксационных процессов (не менее двух).

5. Заключение

Результаты выполненных в данной работе экспериментов и их теоретического анализа позволяют сделать несколько важных выводов:

- зарегистрированный и изученный пик внутреннего трения поликристаллического ниобия в области температур порядка 200 К обладает свойствами термически активированного релаксационного пика, его появление обусловлено взаимодействием упругих колебаний образца с системой однотипных элементарных релаксаторов, имеющих в структурно совершенных образцах энергию активации $U_0 \approx 0,15$ эВ и частоту попыток $\tau_0^{-1} \approx 1 \cdot 10^{10}$ с⁻¹;

- активационные параметры данного пика существенно отличаются от параметров других пиков, наблюдавшихся ранее на моно- и поликристаллах ниобия в области умеренно низких температур (рис. 1);

- положение пика на температурной оси и его форма проявляют заметную чувствительность к структурному состоянию образцов ниобия, параметры пика изменяются при термоциклировании, пластической деформации, отжиге;

- структурная чувствительность параметров пика обусловлена изменением объемной плотности релаксаторов и статистического распределения

энергии активации при изменениях дефектной структуры образцов;

— во всех изученных в наших экспериментах случаях статистическое распределения значений энергии активации релаксаторов хорошо описывается функцией квазигауссовского типа (6) с малой дисперсией, зависящей от структурного состояния образца.

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. H. 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. III, 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 A* **75**, K205 (1983).
12. N. Kuramochi, H. Mizubayashi, and S. Okuda, *Phys. Status Solidi A* **104**, 453 (1987).
13. S. Okuda, T. Motoyama, N. Kuramochi, and T. Arai, *J. Phys. (Paris)* **46**, C10–28 (1985).
14. R. De Batist, *Internal Friction of Structural Defects in Crystalline Solids*, Elsevier, New York (1972).
15. А. Новик, Б. Берри, *Релаксационные явления в кристаллах*, Атомиздат, Москва (1975).

16. П. П. Паль-Валь, Х.-Й. Кауфманн, *ФНТ* **9**, 325 (1983).
17. В. Д. Нацик, П. П. Паль-Валь, С. Н. Смирнов, *Акустический журнал* **44**, 640 (1998).
18. A. Seeger and C. Wüthrich, *Nuovo Cimento* **B33**, 38 (1976).
19. P. P. Pal-Val, V. D. Natsik, and S. Kadeckova, *Philos. Mag.* **A56**, 407 (1987).
20. P. P. Pal-Val, V. D. Natsik, and S. Kadeckova, *Phys. Status Solidi A* **105**, K37 (1988).

The influence of plastic deformation on the form and parameters of the low-temperature internal friction peak in niobium

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

The temperature dependences of the decrement of longitudinal vibrations at the frequencies of 78 and 363 kHz in polycrystalline niobium with the residual resistivity ratio $RRR = 60$ are investigated in a moderately low temperature range. A peak of internal friction located in the vicinity of 200 K is observed. The peak amplitude, width and location temperature vary significantly with frequency and after different effects changing sample defect structure, viz. thermocycling, plastic deformation, prolonged low temperature recovery. It is shown that the absorption peak is caused by the interaction of elastic vibrations of the sample with a system of identical thermoactivated relaxators having in a nearly perfect crystal the activation energy of 0.15 eV and the attack frequency of $1 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$. A theory is suggested which describes the changes in the form and the parameters of the internal friction peak as being due to a statistical spread in values of the relaxation activation energy.