

Нелинейные акустические эффекты в монокристаллах ниобия, обусловленные дислокациями

П.П. Паль-Валь, В.Д. Нацик, 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 25 июня 2003 г.

В широком интервале низких температур $3\text{ К} \leq T \leq 300\text{ К}$ изучены температурные зависимости декремента колебаний δ и динамического модуля Юнга E в монокристаллах высокочистого ниобия. Измерения выполнены методом двойного составного вибратора при возбуждении продольных колебаний с частотой 88 кГц, относительная амплитуда акустической деформации варьировалась в пределах $5 \cdot 10^{-9} < \epsilon_0 < 7 \cdot 10^{-5}$. В температурном интервале 50–200 К зарегистрирован нелинейный эффект — появление амплитудно-зависимых добавок к декременту колебаний и модулю Юнга, который наблюдается при достижении амплитудой ультразвука пороговых значений $\epsilon_{0c} \gtrsim 10^{-5}$. Установлена зависимость значений ϵ_{0c} от температуры и предварительной пластической деформации образца. Детально изучены амплитудные зависимости $\delta(\epsilon_0)$ и $E(\epsilon_0)$ при $\epsilon_0 > \epsilon_{0c}$ и их трансформация при изменениях температуры. Анализ показал, что нелинейные эффекты связаны с отрывом дислокаций, возбуждаемых ультразвуком, от примесных атомов. Результаты эксперимента удовлетворительно согласуются с выводами теории атермического дислокационного гистерезиса Гранато–Люкке и ее обобщения на случай термически активированного гистерезиса, предложенного Инденбомом и Черновым.

У широкому інтервалі низьких температур $3\text{ К} \leq T \leq 300\text{ К}$ вивчено температурні залежності декременту коливань δ і динамічного модуля Юнга E в монокристалах високоочищеного ніобію. Виміри виконано методом подвійного складеного вібратора при збудженні поздовжніх коливань з частотою 88 кГц, відносна амплітуда акустичної деформації варіювалася в межах $5 \cdot 10^{-9} < \epsilon_0 < 7 \cdot 10^{-5}$. У температурному інтервалі 50–200 К зареєстровано нелінійний ефект — появу амплітудно-залежних добавок до декременту коливань і модуля Юнга, котрі спостерігаються при досягненні амплітудою ультразвуку граничних значень $\epsilon_{0c} \gtrsim 10^{-5}$. Виявлено залежність значень ϵ_{0c} від температури і попередньої пластичної деформації зразка. Детально вивчено амплітудні залежності $\delta(\epsilon_0)$ і $E(\epsilon_0)$ при $\epsilon_0 > \epsilon_{0c}$ і їх трансформацію при змінах температури. Аналіз показав, що нелінійні ефекти пов'язані з відривом дислокацій, збуджених ультразвуком, від домішкових атомів. Результати експерименту задовільно узгоджуються з висновками теорії атермічного дислокаційного гістерезису Гранато–Люкке і її узагальненням на випадок термічно активованого гістерезису, запропонованим Инденбомом і Черновим.

PACS: 61.72.Nh

1. Введение

При изучении акустических свойств кристаллов в области низких температур наблюдается ряд линейных и нелинейных эффектов, имеющих дислокационную природу, о чем свидетельствует их зависимость от плотности дислокаций и других па-

раметров дислокационной структуры. Анализ таких эффектов на основе современных теоретических представлений о низкотемпературной подвижности дислокаций дает информацию о тонких деталях динамического поведения дислокаций, например, о взаимодействии дислокаций с примесями, с потен-

циальным рельефом Пайерлса, о влиянии электронной вязкости и квантовых флуктуаций на движение дислокаций и т.д.

К линейным акустическим эффектам принято относить релаксационные резонансы — пики поглощения звука и соответствующие им «ступеньки» дефекта динамического модуля упругости, которые наблюдаются при изучении температурных и частотных зависимостей акустических свойств кристаллов. Нелинейные эффекты, как правило, проявляются в виде зависимости поглощения звука и динамических модулей упругости от амплитуды акустической деформации. При этом критерии наблюдения и характер нелинейных эффектов также существенно зависят от температуры и частоты звука.

Данные акустических измерений являются косвенным, макроскопически усредненным отражением дислокационных процессов в кристаллах. Чтобы иметь возможность получить количественные характеристики соответствующих им элементарных актов микроскопического масштаба, необходимо при интерпретации результатов акустических измерений использовать микроскопические модели, отражающие специфику динамического поведения дислокаций в поле звуковой волны и их взаимодействия с фононной и электронной подсистемами кристаллов, с потенциальным рельефом и с различными дефектами кристаллической структуры [1–8]. В целом удастся достичь качественного согласия экспериментально полученных результатов с предсказаниями теорий, однако при интерпретации нелинейных (амплитудно-зависимых) дислокационных эффектов [2,9] возникает ряд затруднений, причина которых кроется в сложности и разнообразии динамического поведения дислокаций в различных экспериментальных условиях. До сих пор целый ряд вопросов остается открытым для дискуссии. Среди них вопрос о форме петли гистерезиса на зависимости дислокационной деформации от приложенного напряжения при знакопеременном нагружении кристалла, который тесно связан с вопросом о характере открепления дислокаций от локальных центров закрепления: отрыв двойного дислокационного сегмента от одиночного стопора, «катастрофический» отрыв дислокаций от множества стопоров, эффект «сухого» трения при движении дислокационной линии через примеси и т.д. Не выяснен до конца вопрос о функциональном виде амплитудных зависимостей поглощения звука и упругих модулей. И, наконец, значительный интерес представляет вопрос о влиянии термических и квантовых флуктуаций на движение дислокаций через барьеры различной природы и на акустические эффекты, связанные с дислокациями. Имеющихся в настоя-

щее время экспериментальных данных недостаточно, чтобы дать однозначные ответы на поставленные вопросы.

До настоящего времени получено очень мало экспериментальных данных по низкотемпературным нелинейным акустическим свойствам ОЦК металлов, в которых подвижность дислокаций может определяться тормозящим действием как барьеров Пайерлса, так и примесей. Основной целью настоящей работы было экспериментальное исследование и анализ нелинейных акустических эффектов в ниобии, типичном представителе металлов с ОЦК структурой. В килогерцевой области частот и широком интервале низких температур изучены особенности акустического поглощения и динамического модуля упругости, обусловленные динамическими свойствами дислокаций. В то время как линейные акустические свойства ниобия при температурах 2–300 К ранее были систематически изучены в нескольких работах [8,10–13], сведения о нелинейных свойствах в литературе практически отсутствуют.

2. Методика эксперимента

В качестве объекта исследования использован монокристалл ниобия высокой чистоты с величиной приведенного остаточного электросопротивления $RRR \equiv R_{300}/R_0 = 10000$. Для определения значения RRR измеряли температурную зависимость электросопротивления образца в интервале 2–300 К. При этом образец помещали во внешнее магнитное поле, которое использовалось для перевода образца в нормальное состояние при температурах ниже температуры сверхпроводящего перехода $T_c \approx 9,3$ К [14], а затем экспериментальные данные экстраполировали к 0 К и нулевому значению поля. 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].

Исследуемый образец имел форму цилиндрического стержня диаметром 4,2 мм и длиной ~ 24 мм. Кристаллографическая ориентация продольной оси образца имела направление $\langle 100 \rangle$ и была определена с помощью лауэграммы с точностью $\pm 1^\circ$. Исходная плотность дислокаций в образце составляла $\sim 5 \cdot 10^5$ см $^{-2}$. Для выяснения влияния дислокаций на акустические свойства ниобия образцы изучали как в исходном состоянии, так и с увеличенной плотностью дислокаций. Свежие дислокации вводились в образец непосредственно перед проведением акустических измерений путем пластического деформирования четырехточечным изгибом при

комнатной температуре до величины остаточной пластической деформации $\varepsilon_{pl} = 0,65\%$.

Акустические измерения проводили методом двойного составного вибратора [16,17], в образцах возбуждались продольные стоячие волны частотой $f \approx 88$ кГц. Амплитуду ультразвуковой деформации ε_0 и температуру T изменяли в интервалах $5 \cdot 10^{-9} < \varepsilon_0 < 7 \cdot 10^{-5}$ и $2 \text{ K} < T < 340 \text{ K}$ соответственно. В экспериментах регистрировали температурные и амплитудные зависимости декремента колебаний $\delta(T, \varepsilon_0)$ и резонансной частоты составного вибратора, по которой рассчитывали динамический модуль Юнга $E(T, \varepsilon_0)$ [17]. Для контроля за возможными необратимыми изменениями структуры образца под действием ультразвука высокой амплитуды измерения амплитудных зависимостей $\delta(\varepsilon_0)$ и $E(\varepsilon_0)$ проводили в режиме как увеличения, так и уменьшения амплитуды ультразвуковой деформации.

3. Результаты измерений

3.1. Амплитудно-независимый фон внутреннего трения и модуля Юнга

Измеренные температурно-амплитудные зависимости декремента колебаний $\delta(\varepsilon_0, T)$ и динамического модуля Юнга $E(\varepsilon_0, T)$ можно представить в виде суммы двух составляющих: линейных, зависящих только от температуры (фоновых) слагаемых δ_i и E_i и амплитудно-зависимых добавок δ_H и E_H :

$$\delta(\varepsilon_0, T) = \delta_i(T) + \delta_H(\varepsilon_0, T), \quad (1a)$$

$$E(\varepsilon_0, T) = E_i(T) + E_H(\varepsilon_0, T). \quad (1б)$$

Специфической особенностью нелинейных акустических свойств ниобия, по сравнению с другими изученными ранее ОЦК металлами, является существование амплитудных зависимостей δ и E на сложном фоне немонотонных температурных зависимостей $\delta_i(T)$ и $E_i(T)$ (см. рис. 1). Приведенные на рисунке данные получены на недеформированном (кривая 1), деформированном на 0,65% (кривая 2) и отожженном после деформации (кривая 3) образце. На зависимостях $\delta_i(T)$ и $E_i(T)$ следует отметить несколько характерных особенностей, относящихся к различным интервалам температур.

Прежде всего, обращает на себя внимание значительное изменение величины декремента колебаний (на 3–4 порядка) в пределах изученной области температур. Главным образом это объясняется наличием на $\delta_i(T)$ широкого релаксационного максимума (так называемого α -пика [13]), температура локализации которого чувствительна к структурному состоянию образца и находится в интервале 240–280 К. Кроме того, при быстром охлаждении образцов в области

существования сверхпроводящего состояния $T < T_c \approx 9,3 \text{ K}$ на зависимостях $\delta_i(T)$ как в нормальном (n), так и в сверхпроводящем (s) состояниях регистрируется так называемый пик Крамера–Бауэра с температурой локализации 2–3 К [8,10]. Обои пика соответствуют ступеньки на температурных зависимостях модуля $E_i(T)$. Сверхпроводящий переход, как в недеформированном, так и в деформированном ниобии, существенно изменяет ход температурных зависимостей акустических характеристик ниже T_c : понижает величины декремента колебаний и динамического модуля Юнга.

Предварительная пластическая деформация и отжиг образца практически не влияют на фоновые потери ниже T_c в n -состоянии. При более высоких температурах величина δ_i несколько возрастает после деформации и заметно понижается в результате отжига. Соответственно величина модуля Юнга уменьшается после пластической деформации и возрастает после высокотемпературного отжига в высоком вакууме. Максимальная чувствительность

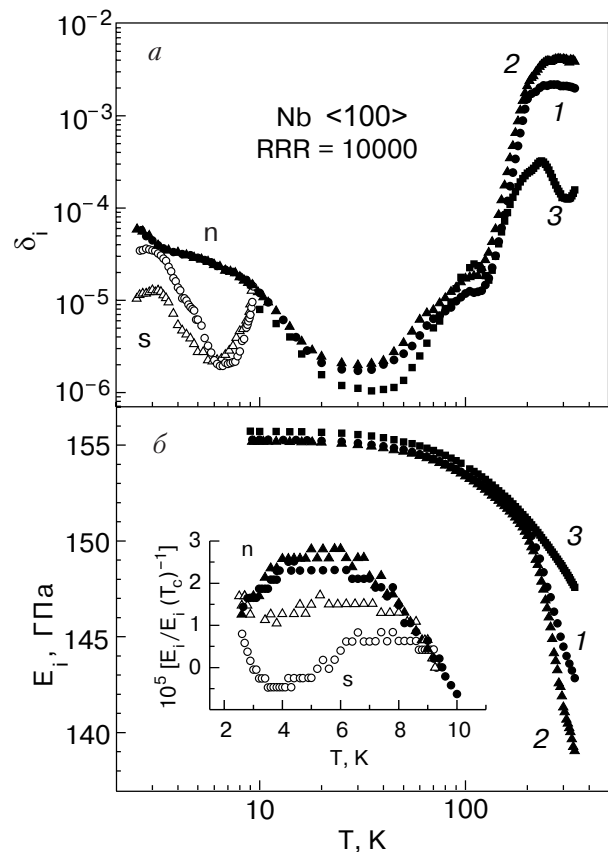


Рис. 1. Температурные зависимости декремента колебаний (а) и динамического модуля Юнга (б) в ниобии, измеренные в амплитудно-независимой области: ●, ○ — недеформированный образец (кривая 1); ▲, △ — пластически деформированный на $\varepsilon_{pl} = 0,65\%$ образец (кривая 2); ■, □ — отожженный образец (кривая 3). Темные символы — n -состояние, светлые символы — s -состояние.

фоновых составляющих к пластической деформации наблюдается в s -состоянии, а также во всех случаях в области температур локализации релаксационных резонансов (пиков поглощения и ступенек дефекта модуля).

3.2. Амплитудные зависимости декремента колебаний и динамического модуля упругости

Приведенные на рис. 2 графики свидетельствуют о том, что в области температур $3\text{ К} < T < 25\text{ К}$ при использованных в эксперименте амплитудах ультразвука $\varepsilon_0 < 7 \cdot 10^{-5}$ зависимость декремента и модуля Юнга от амплитуды практически отсутствует, независимо от того, проводились ли измерения на недеформированном или деформированном образце, в n - или s -состояниях, в области локализации пика Крамера–Бауэра или вне ее. Такое же поведение зависимостей $\delta(T, \varepsilon_0)$ и $E(T, \varepsilon_0)$ зарегистрировано и в области температур $210\text{ К} < T < 300\text{ К}$ вблизи α -пика.

Заметная зависимость акустических свойств ниобия от амплитуды звука была выявлена в промежуточной области температур $50\text{ К} < T < 200\text{ К}$. На рис. 3 показаны амплитудно-зависимые составляющие декремента $\delta_H(T, \varepsilon_0) = \delta(T, \varepsilon_0) - \delta_i(T)$ и относительного изменения модуля Юнга $E_H(T, \varepsilon_0)/E_i(T) = [E(T, \varepsilon_0) - E_i(T)]/E_i(T)$, измеренные в этом температурном интервале. Видно, что критическая амплитуда ε_{0c} начала нелинейных эффектов имеет примерно одинаковые значения для кривых $\delta_H(T, \varepsilon_0)$ и $E_H(T, \varepsilon_0)/E_i(T)$. Этот параметр имеет заметную температурную зависимость:

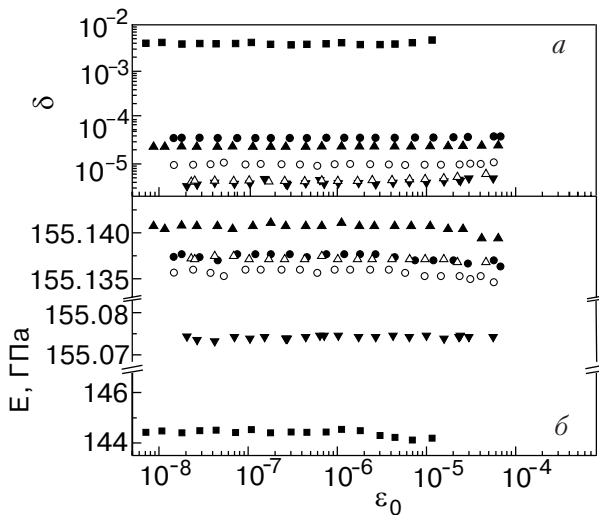


Рис. 2. Влияние амплитуды ультразвука на декремент колебаний (а) и динамический модуль Юнга (б) в области температур $T \leq 25\text{ К}$ и при $T = 300\text{ К}$: \blacktriangledown — 25 К , $\varepsilon_{pl} = 0$; \blacktriangle — 6 К , n -состояние, $\varepsilon_{pl} = 0,65\%$; \triangle — 6 К , s -состояние, $\varepsilon_{pl} = 0,65\%$; \bullet — 3 К , n -состояние, $\varepsilon_{pl} = 0,65\%$; \circ — 3 К , s -состояние, $\varepsilon_{pl} = 0,65\%$; \blacksquare — 300 К , $\varepsilon_{pl} = 0$.

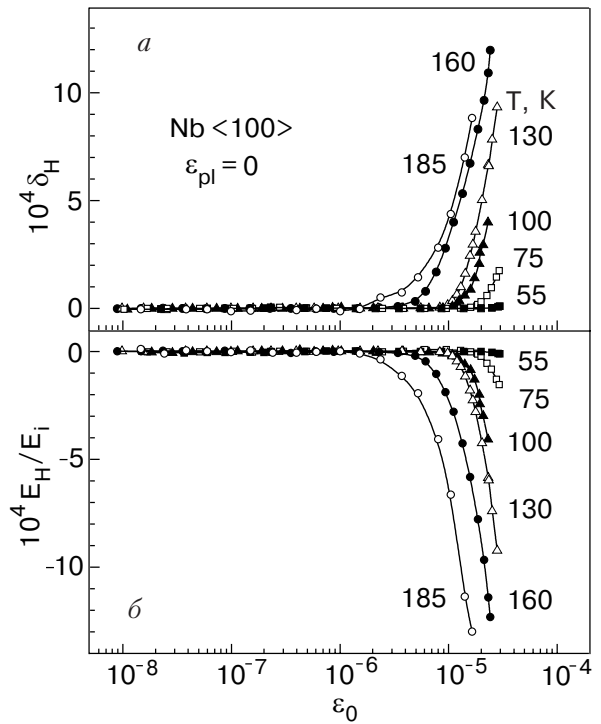


Рис. 3. Амплитудные зависимости декремента колебаний (а) и динамического модуля Юнга (б) в интервале температур $55\text{--}185\text{ К}$ в недеформированном образце.

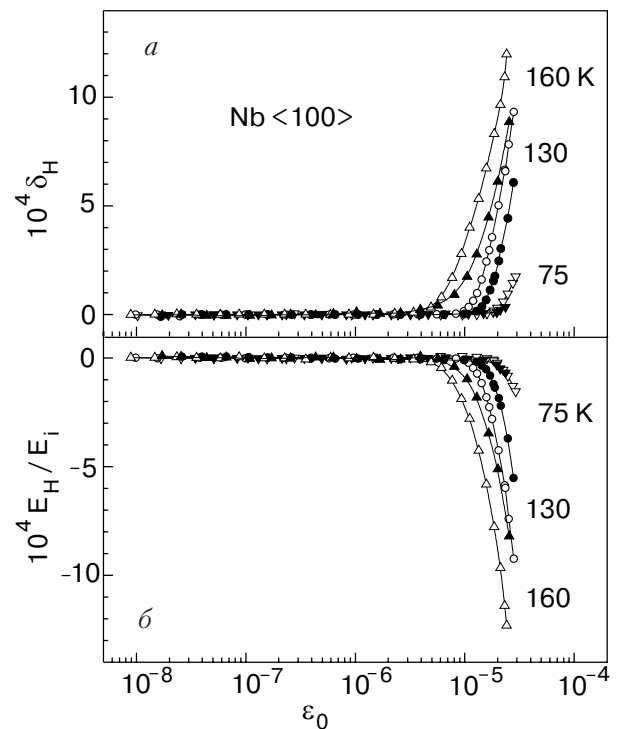


Рис. 4. Влияние пластической деформации на амплитудные зависимости декремента колебаний (а) и динамического модуля Юнга (б): светлые символы — $\varepsilon_{pl} = 0$, темные символы — $\varepsilon_{pl} = 0,65\%$; $\nabla, \blacktriangledown$ — 75 К ; \circ, \bullet — 130 К ; $\triangle, \blacktriangle$ — 160 К .

при понижении температуры ϵ_{0c} возрастает. Более того, в выбранных полулогарифмических координатах амплитудно-зависимые участки кривых $\delta_H(T, \epsilon_0)$ и $E_H(T, \epsilon_0)/E_i(T)$ при изменении T целиком смещаются, оставаясь практически параллельными друг другу. В пластически деформированном на $\epsilon_{pl} = 0,65\%$ образце поведение амплитудных зависимостей качественно сохраняется (см. рис. 4). Однако критическая амплитуда ϵ_{0c} начала нелинейных эффектов заметно возрастает при всех значениях температуры.

Следует отметить, что приведенные на рис. 2–4 кривые $\delta_H(T, \epsilon_0)$ и $E_H(T, \epsilon_0)/E_i(T)$ являлись полностью обратимыми, т.е. значения декремента и дефекта модуля, измеренные при увеличении и последующем уменьшении амплитуды ультразвука, в пределах погрешности эксперимента совпадали между собой.

4. Обсуждение

4.1. Линейные эффекты

В настоящей работе обсуждаются в основном амплитудно-зависимые (нелинейные) акустические эффекты. Ультразвуковые аномалии в линейной области поглощения ультразвука и изменения упругих модулей в моно- и поликристаллах ниобия различной чистоты и ориентации подробно обсуждались в работах [8,10–13]. Здесь уместно лишь напомнить, что низкотемпературный пик Крамера–Бауэра является следствием резонансного взаимодействия упругих колебаний с цепочками геометрических кинков на дислокациях в процессе их термоактивированной диффузии в рельефе Пайерлса 2-го рода [8,10]. Этот процесс характеризуется крайне низкими значениями энергии активации $U_0 \sim 3 \cdot 10^{-3}$ эВ. Элементарным механизмом, ответственным за высокотемпературный α -пик, как было показано в работе [13], является зарождение пар кинков на дислокационных сегментах, лежащих в долинах рельефа Пайерлса 1-го рода. Этому процессу соответствуют значения энергии активации $U_0 \cong 0,15$ эВ.

Следует отметить, что оба названных выше релаксационных резонанса обусловлены исходной дислокационной структурой ниобия — системой винтовых или смешанных дислокаций, возникших при получении образцов в плоскостях скольжения $\{011\}$ и $\{112\}$ и расположенных в долинах рельефа Пайерлса. Электронно-микроскопические исследования показывают, что при пластическом деформировании кристаллов ниобия при комнатной температуре возникают дислокации с преимущественно краевой компонентой [18], линии которых ориентированы под углом к долинам рельефа Пайерлса, а

их подвижность в основном контролируется примесями атомами. Эти дислокации в определенной мере влияют на параметры обсуждаемых релаксационных резонансов, но не приводят к кардинальным изменениям условий их наблюдения [8,12].

4.2. Функциональный вид зависимостей

$$\delta_H(\epsilon_0, T) \text{ и } E_H(\epsilon_0, T)$$

Наличие амплитудных зависимостей свидетельствует о нелинейном характере упругого и неупругого откликов кристалла на приложенную внешнюю периодическую нагрузку. Для установления природы нелинейности необходимо произвести анализ функционального вида амплитудных зависимостей, их поведения при изменении температуры, а также установить величину r — отношения амплитудно-зависимой составляющей декремента к относительной величине амплитудно-зависимой составляющей модуля: $r = \delta_H(\epsilon_0)E_i/E_H(\epsilon_0)$. Поскольку в исследованной области частот, амплитуд колебаний и температур наиболее вероятным является дислокационный механизм нелинейности, приведенный ниже анализ в основном базируется на известных теоретических представлениях о дислокационном гистерезисе, обусловленном отрывом дислокаций от примесных точек закрепления.

Существует несколько теоретических исследований дислокационного амплитудно-зависимого внутреннего трения. Исторически первой и наиболее популярной является теория дислокационных гистерезисных потерь Гранато–Люкке [1]. Используя струнную модель дислокации, авторы предположили, что единичным актом, дающим дополнительный вклад в дислокационную деформацию (а значит, обеспечивающим дополнительные и возрастающие с амплитудой поглощение звука и дефект модуля), является безактивационный «катастрофический» отрыв дислокационных сегментов от сравнительно слабых локальных центров закрепления (например, примесных атомов). Для экспоненциального распределения длин L дислокационных сегментов была получена экспоненциальная зависимость амплитудно-зависимой части декремента δ_H от амплитуды приложенного напряжения сдвига в плоскости скольжения $\sigma_0 = G\epsilon_0 = \Omega E\epsilon_0$ (G — модуль сдвига, Ω — ориентационный фактор, зависящий от взаимного расположения оси нагружения, нормали к плоскости скольжения и направления вектора Бюргерса \mathbf{b}):

$$\delta_H = \frac{8Gb^2\Lambda L_N^3}{\pi^4 CL_c} \left(\frac{\sigma_m}{\sigma_0} - 1 + \dots \right) \exp\left(-\frac{\sigma_m}{\sigma_0}\right); \quad (2a)$$

$$\sigma_m = \pi F_m / 4bL_c. \quad (26)$$

Здесь b – модуль вектора Бюргера; Λ – плотность дислокаций; L_N – расстояние между непреодолимыми центрами закрепления дислокаций (например, узлами дислокационной сетки); L_c – средняя длина дислокационного сегмента, характеризующая среднее расстояние между «слабыми» стопорами (примесями и другими точечными дефектами); $C \cong Gb^2/2$ – линейное натяжение дислокации; σ_m – критическое напряжение безактивационного отрыва дислокации; F_m – максимальная сила связи дислокации с центром закрепления.

Строго говоря, выводы теории [1] справедливы только для $T = 0$ К. В дальнейших ее модификациях [2,19,20] было показано, что в области относительно низких температур характер открепления дислокаций и, следовательно, функциональный вид амплитудных зависимостей не изменяется при повышении температуры, т.е. зависимость $\delta_H(\sigma_0)$ по-прежнему остается экспоненциальной. Учет термических флуктуаций сводится к перенормировке критического напряжения отрыва σ_m – замене его некоторым эффективным напряжением, величина которого должна уменьшаться при повышении температуры. При достаточно низких акустических напряжениях ($\sigma_0 \ll \sigma_m$) в выражении (2а) можно ограничиться одним членом разложения в предэкспоненте. В этом случае проверку соответствия экспериментальных данных выводам теории можно произвести в так называемых координатах Гранато–Люкке $\ln(\delta_H \varepsilon_0^{1/2}) - (\varepsilon_0^{-1})$ (степень $1/2$ при ε_0 позволяет учесть негомогенность деформации в образце при использовании метода составного осциллятора). На рис. 5 показаны перестроенные таким образом зависимости $\delta_H(T, \varepsilon_0)$ для недеформированного образца ниобия, относящиеся к температурному интервалу наблюдения нелинейных эффектов

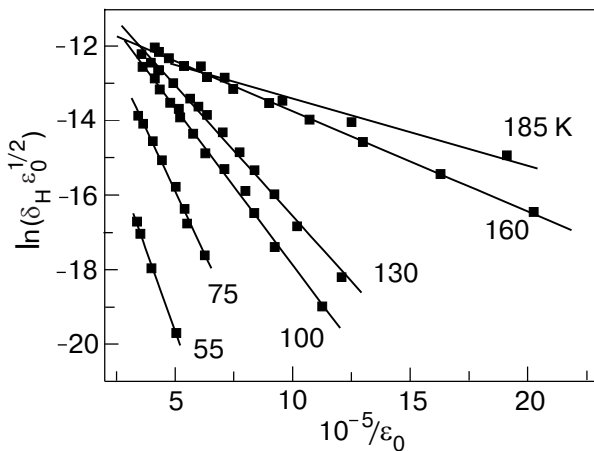


Рис. 5. Амплитудные зависимости декремента колебаний в недеформированном образце ниобия в интервале температур 55–185 К, представленные в координатах Гранато–Люкке [1].

55 К < T < 185 К (исходные данные приведены на рис. 3). Видно, что экспериментальные точки хорошо ложатся на прямые линии. Наклон прямых уменьшается с повышением температуры, которое приводит к уменьшению критического напряжения σ_m . В случае постоянства L_c это эквивалентно уменьшению эффективной максимальной силы связи дислокации с центром закрепления F_m (см. выражения (2а) и (2б)).

В теории термоактивированного дислокационного гистерезиса Инденбома–Чернова [6] рассматривалась задача об отрыве двойной дислокационной петли от локального центра закрепления при конечных температурах $T > 0$ К. Было получено следующее выражение для амплитудно-зависимого декремента колебаний δ_H :

$$\delta_H = L_{\min}^2 \int_{L_{\min}}^{L_N} LN(L)dL; \quad (3а)$$

$$L_{\min} = \bar{F}_m(T)/b\sigma_0. \quad (3б)$$

Здесь $\bar{F}_m = \bar{F}_m(T, f)$ – зависящее от температуры и частоты звука критическое значение силы связи дислокации с дефектом, которое обеспечивает термически активированный отрыв дислокации от дефекта за период колебаний. Согласно теории [6], при постоянном значении частоты f изменение температуры эквивалентно изменению масштаба вдоль оси напряжений (деформаций). Следовательно, кривые амплитудных зависимостей декремента колебаний $\delta_H(T, \varepsilon_0)$ должны переходить друг в друга при изменении масштаба напряжений или, что то же самое, быть параллельными в полулогарифмических координатах $\delta_H - \lg(\sigma_0)$. Такое поведение действительно наблюдается для амплитудных зависимостей, полученных для ниобия в интервале температур 25–185 К (см. рис. 3). Функциональный вид зависимости $\delta_H(\sigma_0)$ в этом случае определяется типом распределения длин дислокационных сегментов. Для экспоненциального распределения амплитудная зависимость также является экспоненциальной:

$$\delta_H = \Lambda L_{\min}^2 \left(1 + \frac{L_{\min}}{L_c} \right) \exp\left(-\frac{L_{\min}}{L_c} \right), \quad (4)$$

а для случая степенной функции распределения для длин сегментов с показателем степени m получено выражение:

$$\delta_H = \frac{\Lambda L_c^2}{m-2} \left(\frac{L_{\min}}{L_c} \right)^{-m+4}. \quad (5)$$

Степенную зависимость $\delta_H(\sigma_0)$ предсказывает также ряд других теорий (см., например, [21–25]),

использующих различные модели для описания амплитудно-зависимого внутреннего трения. Харитонов [21] вычислил гистерезисные потери при отрыве дислокации, закрепленной примесями различной мощности. Асано [22], развивая представления Давиденкова–Писаренко [23,24], исследовал нелинейные потери, обусловленные вязким надбарьерным преодолением дислокационной линией поля напряжений окружающих ее точечных дефектов (механизм «сухого» трения). В этом случае предполагается наличие обратимой микропластической деформация, когда петля гистерезиса на графике $\sigma(\varepsilon_d)$ (ε_d – дислокационная деформация), в отличие от механизмов отрыва [1,2,6], не проходит через нуль. Асано для амплитудно-зависимого декремента и дефекта модуля получил зависимости с одним и тем же показателем степени:

$$\delta_H \sim \varepsilon_0^n; \quad E_H/E_i \sim \varepsilon_0^n. \quad (6)$$

Подобная модель колебаний дислокации внутри примесного облака Коттрелла рассмотрена также в работе Джелли [25]. Степенной характер кривых $\delta_H(\sigma_0)$ может быть легко выявлен в двойных логарифмических координатах $\ln(\delta_H) - \ln(\sigma_0)$. Однако проверка, произведенная для полученных в настоящей работе амплитудных зависимостей $\delta_H(\varepsilon_0)$ и $E_H(\varepsilon_0)/E_i$, показала, что они, в отличие от данных, полученных ранее на высокочистом железе [26], не описываются степенными зависимостями типа (6).

Таким образом, в исследованном интервале температур и амплитуд колебаний нелинейные потери в ниобии удовлетворительно описываются как в рамках теории Гранато–Люкке [1,2], так и теории Инденбома–Чернова [6] при допущении, что распределение примесей вдоль дислокационных линий в ниобии соответствует экспоненциальному распределению длин дислокационных сегментов.

4.3. Активационный анализ

Согласно (2а), наклон прямых в координатах Гранато–Люкке определяется величиной критического напряжения отрыва $\sigma_m = \pi F_m / 4bL_c$. Результаты, приведенные на рис. 5, показывают, что величина σ_m монотонно понижается с ростом температуры в интервале 55 – 185 К. Если предположить, что с изменением температуры средняя длина дислокационных сегментов L_c остается неизменной, то наблюдаемое поведение может свидетельствовать о понижении эффективной величины силы связи F_m дислокации с центрами закрепления при повышении температуры: $F_m \rightarrow \bar{F}_m(T)$. При сделанном допущении температурная зависимость эффективной силы связи дислокации с препятст-

виями, полученная при использовании экспериментальных данных, показана на рис. 6 в координатах $T - \bar{F}_m(T) / \bar{F}_m(100 \text{ К})$.

Приведенная выше интерпретация влияния температуры на нелинейные акустические эффекты соответствует выводам теории термоактивированного дислокационного гистерезиса Инденбома–Чернова [6]. В приближении «энергии связи» амплитудно-зависимый декремент колебаний δ_H зависит только от одного параметра $L_{\min} = \bar{F}_m / b\sigma_0$ (см. (3а) и (4)). Функция $\bar{F}_m = \bar{F}_m(T, f)$ представляет собой решение уравнения

$$U(F) \cong k_B T \ln \left(\xi \frac{v_c}{f} \right), \quad (7a)$$

$$F = bL\sigma_0, \quad v_c \cong \frac{1}{2L_c} \left(\frac{C}{A} \right)^{1/2}, \quad (7b)$$

где $U(F)$ – эффективная энергия активации для процесса термофлуктуационного отрыва дислокационного сегмента длиной L от центра закрепления [6,20]; k_B – постоянная Больцмана; ξ – константа порядка единицы; v_c – собственная частота колебаний дислокационного сегмента длиной L_c ; $A = \rho b^2$ – масса единицы длины дислокационной линии; ρ – плотность материала. Разрезы вдоль $\delta_H = \text{const}$ серии амплитудных зависимостей, измеренных при различных температурах, можно трактовать как

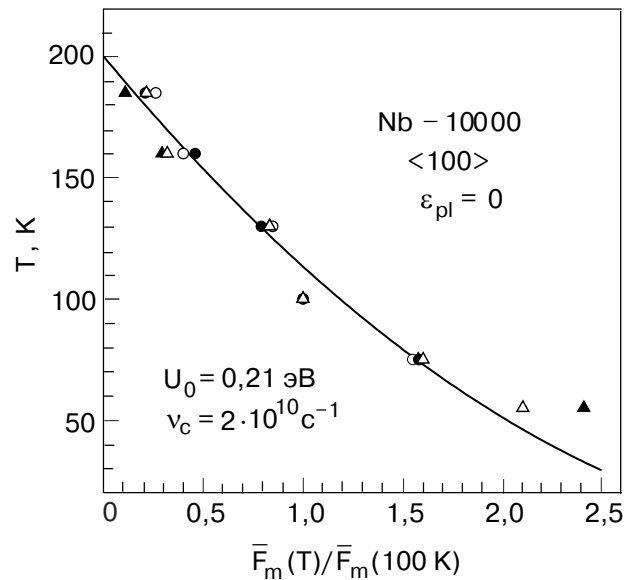


Рис. 6. Активационный график, построенный двумя способами: по изменению наклона прямых в координатах Гранато–Люкке (см. рис. 5) (Δ) и по изменению амплитуды колебаний для сечений серии зависимостей $\delta_H(\varepsilon_0, T)$ при $\delta_H = \text{const}$ на рис. 3 (\blacktriangle – $\delta_H = 1 \cdot 10^{-5}$; \circ – $\delta_H = 5 \cdot 10^{-5}$; \bullet – $\delta_H = 1 \cdot 10^{-4}$). Сплошной линией показана теоретическая зависимость (8).

разрезы $L_{\min} = \text{const}$ и по зависимости $\sigma_0(T)$ (а значит, и $\bar{F}_m(T)$) судить о зависимости энергии активации от напряжения $U(bL_{\min}\sigma_0)$. Результаты подобной процедуры, произведенной для нескольких значений $\delta_H = \text{const}$, отложены в относительных единицах на том же графике, что и данные, полученные в рамках теории Гранато–Люкке (рис. 6). Следует отметить хорошее согласие результатов, полученных двумя существенно различными методами.

Использование выражений (26) и (76) позволяет получить самосогласованные оценки $L_c \approx 1 \cdot 10^{-5}$ см и $v_c \approx 2 \cdot 10^{10}$ с $^{-1}$, а экстраполяция данных рис. 6 на $\bar{F}_m = 0$ дает величину энергии связи дислокации с препятствием U_0 (в единицах $k_B \ln(\xi v_c/f)$). Для уменьшения произвола при проведении экстраполяции и определении U_0 можно воспользоваться какой-либо теоретической зависимостью энергии активации от напряжения. Использование предложенной в работе [19] квадратичной зависимости

$$U(F) = U_0(1 - F/F_m)^2, \quad (8)$$

которая хорошо согласуется с экспериментальными результатами (сплошная линия на рис. 6), позволяет оценить энергию связи дислокаций с центрами закрепления: $U_0 = (0,21 \pm 0,01)$ эВ.

4.4. Отношение δ_H/E_H

При изучении нелинейных акустических эффектов в большинстве случаев анализируются амплитудные зависимости поглощения ультразвука (декремента колебаний), а вопрос о функциональном виде зависимости дефекта модуля от амплитуды, как правило, не обсуждается. В работе Гранато–Люкке отмечалось [1], что при катастрофическом отрыве дислокаций при малых амплитудах звука $E_H(\epsilon_0)/E_i$ ведет себя так же, как и $\delta_H(\epsilon_0)$, так что в первом приближении отношение амплитудно-зависимых декремента и модуля Юнга не должно зависеть от амплитуды и имеет величину порядка единицы: $r = \delta_H E_i/E_H \sim 1$. Более детальный анализ, проведенный в работе [9], показал, что зависимость r от амплитуды может отсутствовать только в том случае, когда $\delta_H(\epsilon_0)$ и $E_H(\epsilon_0)/E_i$ являются степенными функциями с одинаковыми показателями степени n (см. выражения (6)). При этом величина r тем больше, чем больше значение n , а ожидаемый диапазон изменения r оказывается существенно различным для различных моделей дислокационного гистерезиса. Для случая катастрофического отрыва $0,36 < r < 1,15$ при изменении показателя степени в пределах $1 < n < 10$. В более общих предположениях относительно функционального вида зависимостей $\delta_H(\epsilon_0)$ и $E_H(\epsilon_0)/E_i$ величина r в рамках модели катастрофического отрыва не может превосходить $r_{\max} = 2$. В случае, когда реализуется гистерезис-

ный механизм типа «сухое» трение (преодоление дислокационными сегментами большого числа препятствий в течение периода колебаний), значения r должны быть намного большими ($1,33 < r < 5,41$ при $1 < n < 10$), а зависимость r от амплитуды должна отсутствовать.

На рис. 7 представлены амплитудные зависимости величины r , полученные при различных температурах для недеформированного и деформированного образцов ниобия. Обращает на себя внимание большой разброс экспериментальных точек, относящихся к начальным областям амплитудных зависимостей (при малых ϵ_0 значения r лежат в пределах $0,4 \leq r \leq 2,2$). Разброс может быть обусловлен тем, что выделение малых значений δ_H и E_H/E_i на фоне значительных полных измеряемых величин декремента и модуля Юнга на начальных участках амплитудных зависимостей сопряжено со значительными погрешностями. Эти погрешности уменьшаются с ростом величин δ_H и E_H/E_i при повышении ϵ_0 . Разброс экспериментальных точек заметно уменьшается, и прослеживается четкая тенденция приближения значений r к единице. Подобное поведение r наблюдалось ранее при изучении амплитудных зависимостей внутреннего трения в железе [26] и цинке [27]. В отличие от данных, полученных на цинке [27], в настоящей работе не выявлено систематического изменения параметров зависимостей $r(\epsilon_0)$ с изменением температуры. Для одних температур значения r при малых амплитудах были меньше единицы, в то время как для других они превосходили ее. Не выявлено также и систематиче-

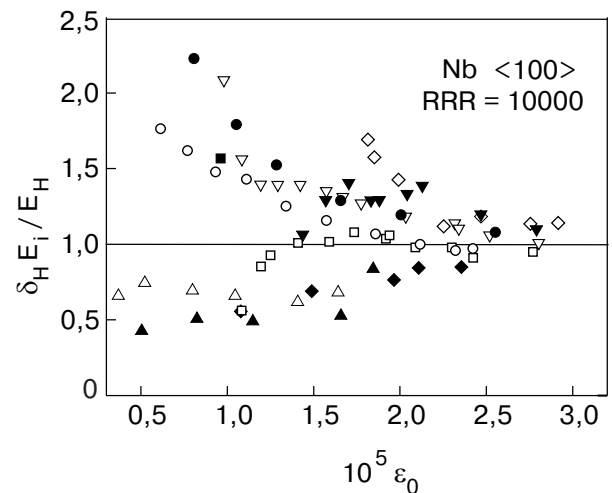


Рис. 7. Зависимость параметра $r = \delta_H E_i/E_H$ от амплитуды акустической деформации при различных температурах в исходном образце (светлые символы) и после пластической деформации $\epsilon_{pl} = 0,65\%$ (темные символы): \diamond, \blacklozenge — 75 К; \square, \bullet — 100 К; $\nabla, \blacktriangledown$ — 130 К; \circ, \bullet — 160 К; $\triangle, \blacktriangle$ — 185 К.

ского изменения r в результате предварительной пластической деформации.

Указанные особенности поведения величины r могут служить еще одним свидетельством того, что высокая чистота образца ниобия позволяет реализовать в изученной области температур и частот ультразвука такие экспериментальные условия, которые, в соответствии с теориями [1,2,6], необходимы для обратимого отрыва дислокационных сегментов от локальных центров закрепления.

4.5. Влияние пластической деформации

Сравнивая данные для недеформированного и предварительно деформированного при комнатной температуре образцов, можно видеть, что пластическая деформация приводит к смещению амплитудных зависимостей $\delta_H(\epsilon_0)$ и $E_H(\epsilon_0)/E_i$ в область более высоких амплитуд (см. рис. 4). Такое влияние пластической деформации в настоящей работе наблюдалось впервые и оказалось прямо противоположным тому влиянию, которое обычно регистрируется при исследовании других кристаллов, в частности, монокристаллов других ОЦК металлов — железа [26,28,31], молибдена [29,30], вольфрама [31]. Известно, что в результате пластической деформации параметры дислокационной структуры кристаллов существенно изменяются: увеличивается плотность дислокаций Λ , изменяются средняя длина дислокационных сегментов L_c и распределение сегментов по длинам $N(L)$. При небольших степенях пластической деформации в достаточно чистых кристаллах может происходить увеличение L_c — как за счет образования свежих сравнительно длинных дислокационных сегментов, так и за счет «вырывания» имевшихся до деформации дислокаций из примесных атмосфер Коттрелла. Поскольку увеличение средней длины дислокационных сегментов понижает критическое напряжение отрыва дислокаций (см. выражения (2) и (4)), условия отрыва дислокаций от закрепляющих центров облегчаются, что должно приводить к смещению амплитудных зависимостей в область более низких амплитуд ультразвука. Наблюдаемое в настоящей работе смещение амплитудных зависимостей $\delta_H(\epsilon_0)$ и $E_H(\epsilon_0)/E_i$ в противоположном направлении может быть следствием уменьшения L_c в деформированном образце. Кроме того, если происходит катастрофический отрыв дислокационных сегментов, то смещение амплитудных зависимостей может быть также обусловлено существенным уменьшением расстояния L_N между непреодолимыми препятствиями (см. выражение (2)). Причиной подобного изменения параметров дислокационной структуры может быть множественное скольжение в образце. При выбранной геометрии нагружения образца все четыре системы легкого

скольжения имеют одинаковые факторы Шмида, что даже на ранней стадии способствует развитию скольжения одновременно в нескольких взаимно пересекающихся плоскостях. При этом существенно возрастает вероятность пересечения дислокаций разных систем скольжения и образования дополнительных непреодолимых центров закрепления (узлов дислокационной сетки), что может привести к уменьшению как L_N , так и L_c . Для окончательного выяснения данного вопроса следовало бы провести исследование дислокационной структуры деформированных образцов ниобия методами прямого структурного анализа, например, с помощью высоковольтного электронного микроскопа.

4.6. Области высоких и низких температур

На первый взгляд, столь же необычным выглядит и отсутствие амплитудных зависимостей в областях температур $210 \text{ К} < T < 300 \text{ К}$ вблизи α -пика, а также низких температур $3 \text{ К} < T < 55 \text{ К}$. Действительно, в железе [26,28] наличие α -пика никак не сказывалось на амплитудных зависимостях: амплитудные зависимости наблюдались и ниже, и выше температуры локализации α -пика, и во всем интервале температур их поведение отвечало представлениям о термоактивированном дислокационном гистерезисе [6]. Авторы [26,28] пришли к заключению, что α -пик и амплитудные зависимости в железе являются отражением различных термоактивированных дислокационных процессов: образования пар кинков на невинтовых дислокациях и отрыва дислокаций, пересекающих под небольшим углом первичный рельеф Пайерлса, от локальных центров закрепления. Далее, в работе [32] при изучении деформированных образцов ниобия на частоте 0,5 Гц заметные амплитудно-зависимые эффекты были выявлены вблизи и выше температуры локализации α -пика, наблюдавшегося при этой частоте колебаний вблизи 135 К. Это даже дало основание авторам предположить, что микроскопическим механизмом α -пика является термоактивированное открепление дислокаций от центров закрепления в соответствии с моделью Коива–Хасигути [4]. Отсутствие в настоящей работе амплитудных зависимостей акустических характеристик в области температур 210–300 К, однако, находит естественное объяснение, если обратить внимание на результат рис. 6, где приведена температурная зависимость относительного изменения эффективной силы связи дислокации с препятствиями. При экстраполяции графика к значению $\bar{F}_m = 0$ на вертикальной оси отсекается величина $T \approx 200 \text{ К}$ — значение температуры, выше которой должен начаться безактивационный отрыв дислокаций. Таким образом, отсутствие

амплитудных зависимостей в интервале температур 210–300 К может быть связано с тем, что механизм отрыва дислокаций, ответственный за амплитудные зависимости при $55 \text{ K} \leq T \leq 185 \text{ K}$, в области $T > 200 \text{ K}$ полностью исчерпывается. Совпадение с областью локализации α -пика является случайным и обусловлено использованной частотой возбуждаемых в образце колебаний.

Отсутствие амплитудных зависимостей акустических характеристик в области низких температур можно было бы объяснить тем, что значения ε_0 , достигаемые в эксперименте, недостаточно высоки для отрыва дислокационных сегментов при температурах $T < 25 \text{ K}$. Однако экстраполяция графика на рис. 6 к $T = 0 \text{ K}$ в соответствии с выражением (8) показывает, что амплитудные зависимости $\delta_H(\varepsilon_0)$ должны были бы наблюдаться вплоть до самых низких температур и иметь значения не ниже $\delta_H \approx 1 \cdot 10^{-4}$. Наблюдаемое расхождение экспериментальных данных с предсказаниями теории может быть связано с тем, что использование формулы (8) для интерпретации данных низкотемпературного эксперимента некорректно и нужно использовать функцию более пологую в области высоких значений F , соответствующих низким температурам. Подобное поведение зависимостей $U(F)$ было отмечено ранее при изучении амплитудных зависимостей в высокочистом молибдене [33]. Такой вид зависимостей $U(F)$ может означать резкое уменьшение активационного объема $V = -dU/d\sigma$ при достижении низких температур. Соответствующие оценки показывают, что при температурах жидкого гелия активационный объем должен уменьшиться до значений $V \sim 1-2 b^3$, в то время, как выражение (8) дает в этой же области температур значения $V \sim 60-80 b^3$.

Выводы

1. Амплитудные зависимости декремента и дефекта модуля Юнга в высокочистых монокристаллах ниобия обусловлены термоактивированным отрывом дислокаций от локальных (примесных) центров закрепления. Об этом свидетельствуют функциональный вид амплитудных зависимостей, их поведение при изменении температуры, а также соотношение между величинами амплитудно-зависимых составляющих декремента и модуля Юнга.

2. В области температур 55–185 К поведение амплитудных зависимостей непротиворечиво описывается теорией атермического дислокационного гистерезиса Гранато–Люкке и ее обобщением на случай термоактивированного дислокационного гистерезиса Инденбома–Чернова.

3. Интерпретация экспериментальных результатов в рамках указанных теорий позволяет сделать

вывод об экспоненциальном распределении длин дислокационных сегментов в изученных кристаллах высокочистого ниобия, а также получить оценку энергии связи дислокаций с центрами закрепления $U_0 \approx 0,21 \text{ эВ}$.

Зарегистрированное в экспериментах отсутствие амплитудных зависимостей в области температур $T < 25 \text{ K}$ и необычное изменение параметров амплитудных зависимостей после пластической деформации пока не имеют однозначной интерпретации; эти вопросы требуют дальнейшего изучения.

Авторы выражают признательность проф. Х.-Й. Кауфманну за предоставленные образцы монокристаллов ниобия и С.В. Лубенцу за полезное обсуждение результатов работы и ценные замечания.

1. A.V. Granato and K. Lücker, *J. Appl. Phys.* **27**, 583 (1956).
2. A.V. Granato and K. Lücker, *J. Appl. Phys.* **52**, 7136 (1981).
3. G. Alefeld, *J. Appl. Phys.* **36**, 2642 (1965).
4. M. Koiwa and R.R. Hasiguti, *Acta Metall.* **13**, 1219 (1965).
5. А. Зегер, П. Шиллер, в кн.: *Физическая акустика*, т.3, ч.А, Мир, Москва (1969).
6. V.L. Indenbom and V.M. Chernov, *Phys. Status Solidi* **A14**, 347 (1972).
7. V.D. Natsik and P.P. Pal-Val, *Mater. Sci. Eng.* **A164**, 312 (1993).
8. П.П. Паль-Валь, В.Д. Нацик, Л.Н. Паль-Валь, *ФНТ* **21**, 647 (1995).
9. А.В. Lebedev, *Philos. Mag.* **A74**, 137 (1996).
10. В.Д. Нацик, П.П. Паль-Валь, *ФНТ* **23**, 1229 (1997).
11. П.П. Паль-Валь, *ФНТ* **23**, 1250 (1997).
12. П.П. Паль-Валь, В.Д. Нацик, Л.Н. Паль-Валь, Ю.А. Семеренко, *ФНТ* **25**, 748 (1999).
13. П.П. Паль-Валь, В.Д. Нацик, Л.Н. Паль-Валь, Ю.А. Семеренко, *ФНТ* **27**, 547 (2001).
14. B. Fellmuth, D. Elefant, and J.-I. Mönch, *Phys. Status Solidi* **A100**, 597 (1987).
15. B. Fellmuth, H. Maas, and D. Elefant, *Metrologia* **21**, 169 (1985).
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. L.P. Kubin, *Comments Cond. Matter. Phys.* **14**, 69 (1988).
19. L.J. Teutonico, A.V. Granato, and K. Lücker, *J. Appl. Phys.* **35**, 220 (1964).
20. K. Lücker, A.V. Granato, and L.J. Teutonico, *J. Appl. Phys.* **39**, 5181 (1968).
21. А.В. Харитонов. *Акустический журнал* **11**, 226 (1965).
22. S. Asano, *J. Phys. Soc. Jpn* **29**, 952 (1970).
23. Н.Н. Давиденков, *ЖТФ* **8**, 483 (1938).

24. Г.С. Писаренко, в кн: *Рассеяние энергии при механических колебаниях*, Изд-во АН УССР, Киев (1962), с. 146.
25. D. Gelli, *J. Appl. Phys.* **33**, 1547 (1962).
26. П.П. Паль-Валь, *ФНТ* **25**, 83 (1999).
27. В.Я. Платков, И.К. Носолев, *Изв. РАН, Физика* **57**, 26 (1993).
28. P.P. Pal-Val, V.D.Natsik, and S. Kadeckova, *Philos. Mag.* **A56**, 407 (1987).
29. P.P. Pal-Val and H.-J. Kaufmann, *Cryst. Res. Technol.* **19**, 1049 (1984).
30. П.П. Паль-Валь, Х.-Й. Кауфманн, В.И. Старцев, *ФТТ* **27**, 852 (1985).
31. G.S. Baker and S.H. Carpenter, *J. Appl. Phys.* **38**, 3557 (1967).
32. R. Klam, H. Schultz, and H.E. Schaefer, *Acta Metallurg.* **28**, 259 (1980).
33. H.-J. Kaufmann and P.P. Pal-Val, *Phys. Status Solidi* **A62**, 569 (1980).

Nonlinear acoustic effects in niobium single crystals caused by dislocations

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

The temperature dependences of logarithmic decrement δ and dynamic Young's modulus E in high purity niobium single crystals are investigated in a wide low temperature range from 3 K to 300 K. The measurements are carried out using the two-component composite vibrator method with exciting longitudinal oscillations of a frequency about 88 kHz. A relative amplitude of ultrasonic strain ε_0 is varied within the limits from $5 \cdot 10^{-9}$ to $7 \cdot 10^{-5}$. A nonlinear effect is registered in the temperature interval from 50 to 200 K: amplitude dependent contributions to the decrement and Young's modulus are observed when of the ultrasound strain amplitude ε_{0c} becomes as high as $1 \cdot 10^{-5}$. It is found that ε_{0c} is dependent on temperature and preliminary plastic deformation. The amplitude dependences $\delta(\varepsilon_0)$ and $E(\varepsilon_0)$ at $\varepsilon_0 > \varepsilon_{0c}$ and their transformations with temperature are investigated in details. The analysis shows that the nonlinear effects are caused by the break-away of ultrasonically excited dislocations from the impurity atoms. The results obtained agree satisfactorily with the predictions of the Granato-Lucke theory of athermic dislocation hysteresis and its generalization to the case of thermally activated dislocation hysteresis proposed by Indenbom and Chernov.