

Механодинамическое проникновение атомов гелия в нанокристаллическое железо

© О.В. Клявин, В.И. Николаев, Б.И. Смирнов, Л.В. Хабарин, Ю.М. Чернов, В.В. Шпейзман

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: shpeizm.v@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 22 декабря 2006 г.)

Исследована связь характеристик пластической деформации с особенностями механодинамического проникновения гелия в нанокристаллическое железо, деформируемое сжатием при температуре 4.2 К. Образцы железа с размерами зерен порядка 200 нм были получены путем многократного равноканального углового прессования. Деформация образцов происходила гигантскими скачками сдвига, величина которых составляла 6–7% в среднем по образцу, или несколько тысяч процентов деформации в полосе сдвига. Измерено количество гелия в деформированных до разных степеней образцах и получены кривые экстракции гелия из них в области температур 300–1400 К. Обнаружено, что при деформации $\sim 50\%$ количество вошедшего в образец гелия резко (более чем в 100 раз) увеличивается по сравнению с образцами, деформированными до меньших степеней. Найдено, что при увеличении скорости деформации возрастает величина деформации в скачке (локализация деформации усиливается), а количество вошедшего гелия уменьшается, вероятно, вследствие уменьшения времени деформации. Кривые экстракции гелия при повышении температуры имеют несколько пиков. Положение некоторых из них по температуре примерно одинаково для образцов с различной степенью деформации, другие характерны только для образцов с определенной степенью деформации. Полученные результаты указывают на существование различных типов ловушек гелия, зависящих от исходной структуры и величины деформации и отличающихся содержанием гелия в них и температурой, при которой происходит освобождение гелия из этих ловушек.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 06-08-01204).

PACS: 61.82.Rx, 62.20.-x

Настоящая работа является продолжением исследований явления механодинамического проникновения (МДП) частиц (атомов или молекул) внешней среды и его влияния на физико-механические свойства твердых тел с различным типом сил связи и исходной дефектной структурой [1–4]. Этот новый механизм взаимодействия частиц внешней среды с твердыми телами возникает только в процессе их пластической деформации. Проникновение частиц среды происходит по зарождающимся и движущимся дефектам их структуры, например, дислокациям. Явление МДП имеет атермическую природу и эффективно работает в среде жидкого гелия. Экспериментально микроскопические параметры процесса размножения дислокаций в поверхностном слое деформируемого материала в различных средах были изучены на примере модельных ионных монокристаллов типа NaCl [3]. Общая теория динамического переноса частиц внешней среды различными типами движущихся дефектов еще не построена ввиду больших методических трудностей расчетов межатомного взаимодействия движущихся дефектов с частицами внешней среды. Качественная модель переноса легких атомов перегибами на движущихся дислокациях была разработана в [5,6]. В [7] было показано, что интенсивность проникновения гелия в нанокристаллическую медь, деформируемую сжатием при $T = 4.2$ К, определяется типом деформационных дефектов (дислокации, двойники, границы

зерен), участвующих в процессе ее пластической деформации на различных стадиях. При этом в противоположность монокристаллической меди для нанокристаллической структуры отсутствует корреляция между видом кривых сжатия и количеством гелия в образцах в зависимости от степени их деформации. Это связано с последовательным включением в пластическую деформацию образцов наномеди дислокационных процессов, двойникования и межзеренного скольжения, по-разному влияющих на МДП атомов гелия. Интенсивность накопления гелия в деформируемых образцах оказалась максимальной при межзеренном скольжении, которое наблюдается при больших степенях деформации. Гелий отсутствует при деформировании путем двойникования, возникающего после прохождения начальной стадии деформации наномеди. На ней имеет место внутриверенный дислокационный механизм деформации образцов. Проникновение гелия в образцы четко фиксируется высокоразрешающим методом масс-спектрометрии [8].

Задача настоящей работы заключается в исследовании закономерностей проникновения гелия в нанокристаллическое железо в зависимости от степени его деформации сжатием в среде жидкого гелия ($T = 4.2$ К), а также в обнаружении связи между кривыми выделения гелия при нагревании с постоянной скоростью деформированных образцов и степенью и характером их деформации.

1. Экспериментальная методика

Исследовалось поликристаллическое армко-железо, предварительно подвергнутое многократному равнонаправленному угловому прессованию [9]. Размер зерна составлял примерно 200 нм. Цилиндрические образцы диаметром 3 и высотой 8 мм испытывались на сжатие при 4.2 К на универсальной испытательной машине Instron 1342 в гелиевом криостате фирмы Oxford. Скорость перемещения подвижного захвата машины составляла 0.1–10 мм/мин, что соответствовало средней скорости относительной деформации образца $2 \cdot 10^{-4} - 2 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. Образцы разгружались после достижения различной величины деформации в интервале 6.3–72%. Определение содержания гелия в деформированных образцах проводилось высокоразрешающим масс-спектрометрическим методом с порогом чувствительности по $\text{He}^4 \sim 10^9$ атомов [8]. Анализировалась вся рабочая длина образцов после их пластической деформации.

С целью исследования кинетики выделения и обнаружения ловушек гелия были получены кривые экстракции гелия из них при постоянной скорости нагрева 4–5 К/мин в области $T = 300 - 1400 \text{ K}$.

2. Результаты исследований и их обсуждение

2.1. Кривые деформации. На рис. 1, *a, b* показаны кривые сжатия при 4.2 К пяти образцов наножелеза с различной конечной деформацией ($\epsilon = 6.3 - 54\%$). Рис. 1, *b* демонстрирует влияние скорости деформации на кривые сжатия. Количественный анализ кривых для всех исследованных образцов приведен в таблице. Видно, что на всех кривых сжатия наблюдаются гигантские скачки напряжений, амплитуда которых σ_s слабо зависит от деформации и увеличивается с ростом скорости деформации, достигая в некоторых случаях $\sim 70\%$ величины действующих напряжений. Такие глубокие скачки напряжений отвечают осевым перемещениям 0.5–0.8 мм, что соответствует деформации в скачке $\epsilon_s = 6 - 10\%$, если изменение длины образца относить ко всей длине (см. рис. 1 и таблицу). При рассмотрении деформированных образцов в оптическом микроскопе уже при небольшом увеличении можно было обнаружить гигантские макроскопические полосы сдвига (рис. 2) с величиной деформации в них, достигающей нескольких тысяч процентов. Однако не всегда наблюдается соответствие между числом видимых на деформированных образцах макрополос скольжения и числом скачков на диаграммах их сжатия (ср. рис. 1 и 2). Этот факт говорит о том, что, по-видимому, скачки деформации могут возникать вблизи уже появившихся ранее макрополос скольжения как за счет их расширения с сохранением величины сдвига в полосе, так и в результате увеличения сдвига в полосе при дальнейшей деформации образца. Обнаружена также корреляция между величиной полной

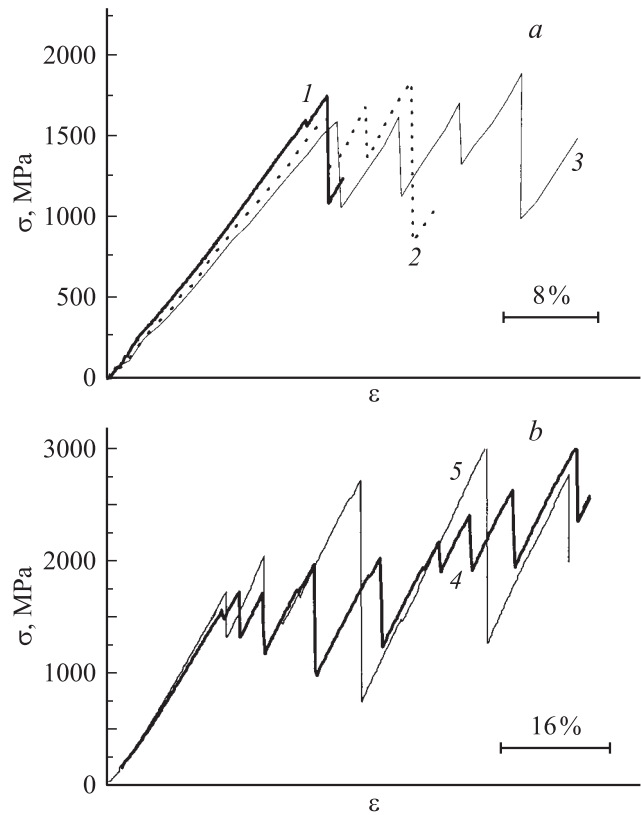


Рис. 1. Кривые сжатия при 4.2 К образцов нанокристаллического железа. Средняя скорость деформации $\dot{\epsilon} = 2 \cdot 10^{-4}$ (1–4) и $2 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ (5). Деформация $\epsilon \leq 25\%$ (a), $\epsilon \sim 50\%$ (b). Номер кривой соответствует номеру образца в таблице.

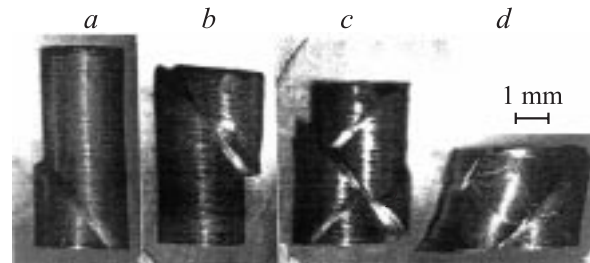


Рис. 2. Внешний вид образцов нанокристаллического железа после деформации 6.3 (a), 19 (b), 25 (c) и 51% (d). Скорость деформации $\dot{\epsilon} = 2 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$.

деформации образцов и числом скачков на кривых их сжатия (см. таблицу). Образцы, деформированные примерно на одинаковую степень деформации, но с разными скоростями ($\epsilon = 51\%$, $\dot{\epsilon} = 2 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ и $\epsilon = 53\%$, $\dot{\epsilon} = 2 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$) значительно различаются по внешней форме и числу скачков в них. При малой скорости деформации на диаграмме сжатия появлялось восемь скачков и образец сохранял примерно цилиндрическую форму. При большой скорости число скачков уменьшалось до пяти и деформированный образец терял свою цилиндрическую форму. Она сильно искажалась из-за большей локализации деформации при малом числе скачков. В образце появлялись области больших пласти-

Характеристики деформации при 4.2 К и количество МДП-гелия в образцах

№	Материал	Вид и скорость деформации $\dot{\epsilon}$, s^{-1}	Величина деформации ϵ_s , %	Число скачков	Средняя деформация в скачке ϵ_s , %	Средняя величина скачка σ_s , МПа	Количество МДП-гелия, 10^{11} ат.
1	Fe	Сжатие, $2 \cdot 10^{-4}$	6.3	1	6.3	510	20.6
2	Fe	То же	19	3	6.3	560	33.9
3	Fe	» »	25	4	6.3	550	31.3
4	Fe	» »	51	8	6.4	614	3684
5	Fe	Сжатие, $2 \cdot 10^{-2}$	54	5	10.7	1136	238
6	Fe	Сжатие,* $2 \cdot 10^{-3}$	72	8	9	690	25.1
7	Fe	Растяжение, $2 \cdot 10^{-4}$	< 0.1	1	< 0.1	< 0.1	6.5
8	Fe	Без деформации	0	0	0	0	1.5
9	Nb	Сжатие, $4 \cdot 10^{-4}$	36	4	9	750	72.8

* Испытывался в газообразном гелии, остальные образцы — в жидком гелии.

ческих сдвигов, разориентированные друг относительно друга. Если при малой скорости деформации величина $\epsilon_s = 6.3\%$, то при высокой скорости она возрастает до 10.7%. Обнаружена линейная зависимость между логарифмом скорости деформации и величиной ϵ_s (рис. 3). Анализ кривых сжатия показывает, что при постоянной скорости деформации ($2 \cdot 10^{-4} s^{-1}$) число скачков и степень деформации образцов коррелируют друг с другом. При этом величина деформации на один скачок сохраняется постоянной (см. таблицу).

Были проведены также опыты на растяжение образцов (диаметр и длина рабочей части 3 и 30 mm соответственно) при $T = 4.2$ К. Образцы разрушались на пределе текучести ($\sigma = 1.1$ GPa) вблизи захватов с характерным неровным и зернистым типом поверхности разрушения, расположенной под углом к оси нагружения, близким к углу, под которым расположены полосы локализованного сдвига при сжатии. Заметим, что макроскопический предел текучести при сжатии (напряжение первого большого скачка напряжений на диаграмме) составлял 1.5–1.6 GPa (для разных образцов). Микроскопическая деформация наблюдалась и при меньших напряжениях. Возможно, при растяжении эти микродеформации приводили к образованию узкой зоны локализованного сдвига, приводящего к разделению образца на части.

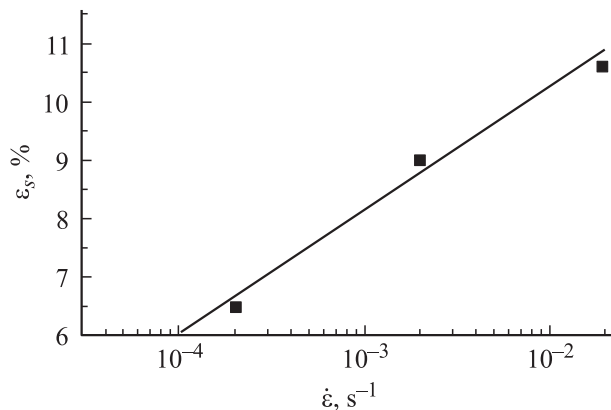


Рис. 3. Зависимость средней деформации в скачке ϵ_s от скорости деформации $\dot{\epsilon}$.

2.2. Выделение гелия из деформированных образцов. Образцы наножелеза, деформированные на различные степени деформации, были подвергнуты динамическому отжигу с постоянной скоростью нагрева в области температур $T = 293–1400$ К с целью получения информации о количестве проникшего в них гелия и обнаружения его ловушек в исследованной области температур. Полученные данные приведены на рис. 4 и в таблице. Количество гелия в подвергнутом растяжению образце в той его области, которая примыкает к поверхности разделения его на части, составляло $6.5 \cdot 10^{11}$ атомов, что заметно превышает величину $1.5 \cdot 10^{11}$, полученную для недеформированного образца. Это подтверждает высказанное выше предположение о том, что разрушение (разделение на части) происходит в результате локализованного сдвига, а гелий проник в область разрушения образца в процессе его кратковременной пластической деформации.

Деформация образцов наножелеза сжатием при $T = 4.2$ К производилась до $\epsilon = 6–54\%$ в среде жидкого гелия при скоростях деформации $\dot{\epsilon} = 2 \cdot 10^{-4}$ и $2 \cdot 10^{-2} s^{-1}$ и до $\epsilon = 72\%$ в газообразном гелии при $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$. Кривые экстракции гелия из образцов, деформированных в области $\epsilon = 6–25\%$, имеют зигзагообразный вид с постепенным нарастанием количества выделяемого из них гелия (рис. 4, а). На всех трех кривых появляется широкий пик выделения гелия в области $T = 800$ К, соответствующий приблизительно температуре рекристаллизации железа ($T_R \sim 0.45T_m$, где T_m — температура плавления). Для образца, деформированного до $\epsilon = 6.3\%$, при $T = 900$ К появляется очень резкий точечный пик выделения гелия, а также более широкий и меньший по амплитуде пик при $T \sim 1100$ К. При $\epsilon = 19\%$ возникает один низкотемпературный пик при $T = 550$ К $\approx 0.3T_m$ и трехточечный высокотемпературный пик при $T = 1390$ К (кривая 2). С ростом ϵ до 25% взрывные пики исчезают (кривые 3).

Таким образом, в деформированном образце имеются как низкотемпературные (мелкие), так и высокотемпературные (глубокие) ловушки гелия качественно различного характера. В первом случае „взрывной“ выброс

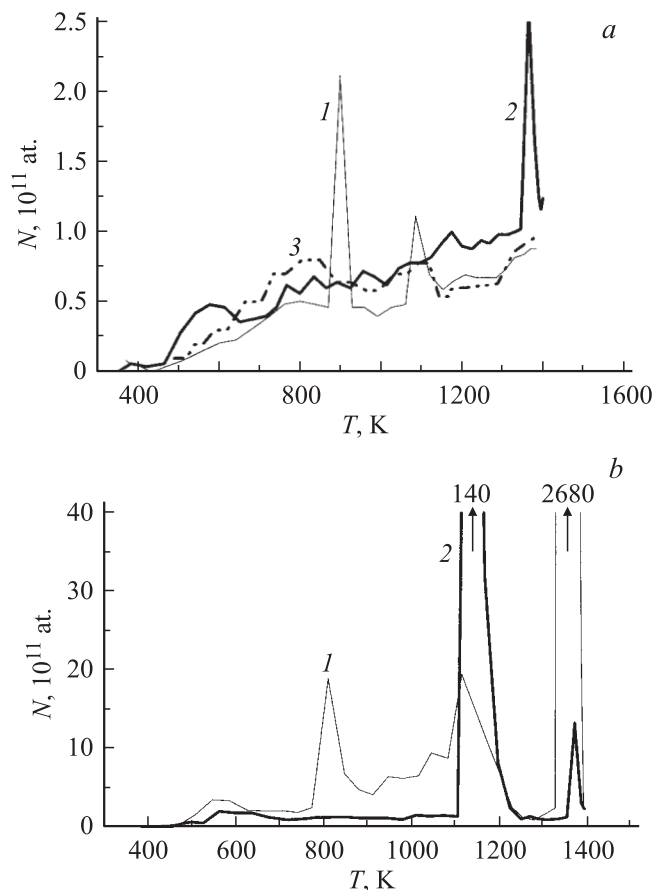


Рис. 4. Кривые экстракции гелия при нагревании образцов нанокристаллического железа после их деформации в жидком гелии до различных степеней деформации. $\varepsilon, \%$: *a*) 1 — 6.3, 2 — 19, 3 — 25; *b*) 1) — 51, 2 — 54. Скорость деформации $\dot{\varepsilon} = 2 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ для кривой 2 на части *b*, для остальных — $2 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$.

гелия характерен для так называемого бустер-эффекта, трехточечного пика выделения гелия из наноразмерных замкнутых пор, находящихся вблизи наружной поверхности образца. Эти микропоры могут появляться в области максимальной локальной деформации образца наножелеза, возникающей при последовательном прохождении через его поперечное сечение макроскопических скачков пластической деформации, показанных на рис. 2. Однако взрывное выделение гелия при увеличении степени деформации и числа скачков в образцах носит нерегулярный характер и, по-видимому, зависит не только от числа скачков на кривых сжатия, но и от взаимного расположения макропластических сдвигов и наличия областей их пересечения, приводящих к образованию замкнутых залечивающихся динамических микротрещин, существенно меняющих форму образцов и степень локализации в них пластической деформации при прохождении скачков (рис. 2). При $\dot{\varepsilon} = 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ и увеличении степени деформации образца до $\varepsilon = 51\%$ количество вошедшего в образец гелия возрастает более чем в 100 раз по сравнению с деформированными до

$\varepsilon = 25\%$ (с $31.3 \cdot 10^{11}$ до $3684 \cdot 10^{11}$ атомов). Количество гелия оказывается непропорциональным числу скачков на кривой сжатия и степени деформации образцов (см. таблицу). Этот результат можно объяснить образованием в процессе деформации крупных ловушек (возможно, макротрещин или полостей), куда по дефектам (дислокациям, границам зерен и др.) проникают атомы гелия. При этом, очевидно, скорость проникновения определяется не перемещением атомов среды по движущимся дефектам, а свойствами ловушек, т.е. возможностями накопления в них гелия. При сильной локализации деформации могут возникать макроскопические трещины и пустоты [10], в которые входит гелий и в которых он остается после прекращения деформации.

На кривой экстракции гелия из деформированного до $\varepsilon = 54\%$ образца появляются три пика (рис. 4, *b*). Пик при $T = 830\text{--}850 \text{ K}$ приблизительно соответствует температуре рекристаллизации железа. Далее появляется широкий пик при $T \sim 1140 \text{ K}$ (кривая 2 на рис. 4, *b*). Третий пик при $T = 1393 \text{ K}$ имеет точечный характер и соответствует выделению основного количества гелия. С увеличением скорости деформации образцов на два порядка (до $2 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$) и при примерно одинаковой степени их деформации (51–54%) характер кривой экстракции гелия значительно меняется. Взрывной пик с очень большим количеством гелия при $T = 1393 \text{ K}$ практически исчезает (кривая 1 на рис. 4, *b*), но появляется большой пик при $T = 1160 \text{ K}$. Число скачков на кривой сжатия при этом уменьшается с восьми до пяти, а локализация пластической деформации в скачках повышается (см. таблицу). Накопление атомов гелия в макрополосах, сопровождающих появление скачков, возрастает. Однако количество гелия в образце по сравнению с малой скоростью его деформации уменьшается на полтора порядка (соответственно $238 \cdot 10^{11}$ и $3684 \cdot 10^{11}$ атомов). Таким образом, отсутствует корреляция между количеством гелия в образцах и числом скачков на кривых их сжатия. Это означает, что тип и глубина ловушек гелия в деформированных образцах сложным образом зависят как от степени, так и от скорости их пластической деформации и существенно образом определяются характером изменения межзеренной атомной структуры образцов со степенью и скоростью их пластической деформации. Энергетический анализ ловушек гелия методом его экстракции, а также изучение характера изменения межзеренной структуры в процессе пластической деформации наножелеза в среде жидкого гелия требуют систематических исследований, которые отсутствуют в настоящее время. Сравнение испытаний в жидком и газообразном ($\sim 5 \text{ K}$) гелии показали, что уменьшение плотности среды значительно уменьшает МДП гелия [2], несмотря на то что характер кривой сжатия практически не изменяется. Доказательством последнего может служить тот факт, что на зависимости средней деформации в скачке от скорости деформации не сказывается, в какой среде проводилось испытание, жидкой или газообразной (рис. 3).

2.3. Локальный нагрев деформируемых образцов наножиелеза. Рассмотрим полученные данные с точки зрения наличия локального нагрева образцов, возникающего из-за появления скачкообразного характера их пластической деформации в среде жидкого и газообразного гелия. Как следует из [2,11], значительный локальный разогрев кристаллических материалов при очень низких температурах зависит как от их теплоемкости и теплопроводности, так и от температуры среды, коэффициента теплоотдачи (поверхностного теплообмена) деформируемых образцов и скорости их деформации в среде жидкого и газообразного гелия. В [12] была сделана попытка экспериментально оценить величину локального разогрева ниобия с использованием эффекта перехода его в сверхпроводящее состояние при $T = 8.7$ К. Оценка показала, что величина разогрева полосы локального сдвига может превышать 200 К, а образца в целом — 70 К. Как показывает сравнение кривых сжатия при 4.2 К нанокристаллических ниобия [12] и железа, они качественно не различаются. Деформация осуществляется путем гигантских локализованных сдвигов, при которых значительная часть образца (до половины) смещается относительно другой его части на расстояние порядка миллиметра или его долей. Первая полоса сдвига проходит через весь образец, последующие могут пересекать уже имеющиеся полосы или упираться в них (рис. 2). Для сравнения были проведены измерения МДП гелия в наноиобий после его деформации в жидком гелии (см. таблицу). Существенных различий в поведении ниобия и армо-железа обнаружено не было. Можно полагать, что величина разогрева в момент скачка деформации в железе близка к приведенной в [12] для ниобия.

Используя теоретическую модель тепловой неустойчивости деформации при низких температурах [13], можно объяснить обнаруженный в работе эффект влияния скорости деформации на кривые сжатия и количество вошедшего в образец гелия при деформации. При большой скорости величина разогрева, которая определяет глубину скачка и среднюю деформацию в полосе локализованного сдвига, может возрастать из-за того, что уменьшается та часть энергии деформации, которая уходит во внешнюю среду. Процесс разогрева приближается к адиабатическому, что повышает и локальную температуру, и температуру образца в целом. В пользу предположения о том, что процесс не является адиабатическим, свидетельствует также то, что угол к оси нагружения, под которым расположены полосы сдвига при сжатии и плоскость разрушения, при растяжении ближе к 45° , чем к углу октаэдрического сдвига, который наблюдается, например, при высокоскоростном адиабатическом разрушении [14].

Увеличение деформации в скачке при повышении ее скорости приводит к сокращению числа скачков при заданной общей деформации и уменьшает число возможных пересечений полос локализованной деформации, приводящих к образованию макротрещин и пустот, которые являются ловушками для атомов гелия. Кроме

того, большие скачки могут искажать форму образца, особенно тех его частей, которые примыкают к торцам, и деформация теряет вид геометрически правильных полос. Все это затрудняет образование макрополостей при деформации и уменьшает МДП гелия.

В заключение следует заметить, что и характер деформации при 4.2 К для ГЦК- [7] и ОЦК-металлов, и закономерности МДП атомов гелия в них существенно различаются. Количество МДП гелия в ОЦК-металлах значительно больше, чем в ГЦК-металлах, уже в области малых деформаций, а после $\epsilon \sim 50\%$ в образце нанокристаллического железа наблюдается резкое (более чем в 100 раз) увеличение числа атомов гелия, вошедших при его деформации.

Таким образом, в работе показано, что высокая степень локализации деформации наножиелеза в жидком гелии, которая реализуется путем небольшого числа скачков гигантской амплитуды на кривых сжатия и приводит к значительному повышению температуры в областях сдвига, способствует высокой интенсивности проникновения гелия в этот металл, особенно при $\epsilon > 50\%$. Возможно, большую роль в этом процессе играет межзеренный механизм деформации, который, как показано в [7], обеспечивает более высокую интенсивность проникновения гелия по сравнению с внутризеренными дислокационными механизмами.

Авторы благодарят Г.А. Малыгина за полезное обсуждение результатов работы.

Список литературы

- [1] O.V. Klyavin, N.P. Likhodedov, A.N. Orlov. *Progr. Surf. Sci.* **33**, 259 (1990).
- [2] О.В. Клявин. *Физика пластичности кристаллов при гелиевых температурах*. Наука, М. (1987). 255 с.
- [3] О.В. Клявин. *ФТТ* **35**, 513 (1993).
- [4] О.В. Клявин, Б.А. Мамырин, Л.В. Хабарин, Ю.М. Чернов. *ФТТ* **47**, 837 (2005).
- [5] А.Н. Орлов. *ФТТ* **29**, 3676 (1987).
- [6] А.С. Бакенов, В.В. Кирсанов, О.В. Клявин, Н.П. Лиходедов, А.Н. Орлов. *ФТТ* **30**, 2459 (1988).
- [7] О.В. Клявин, В.И. Николаев, Л.В. Хабарин, Ю.М. Чернов, В.В. Шпейзман. *ФТТ* **45**, 2187 (2003).
- [8] О.В. Клявин, Б.А. Мамырин, Л.В. Хабарин, Ю.М. Чернов, В.С. Юденич. *ФТТ* **18**, 1281 (1976).
- [9] В.М. Сегал, В.И. Резников, А.Е. Дробышевский, В.И. Копылов. *Изв. АН СССР. Металлы* **1**, 115 (1981).
- [10] Т.С. Орлова, Б.И. Смирнов, В.А. Степанов, В.В. Шпейзман. *Пробл. прочности* **3**, 68 (1982).
- [11] Г.А. Малыгин. *ФТТ* **39**, 2019 (1997).
- [12] В.В. Шпейзман, В.И. Николаев, Б.И. Смирнов, А.Б. Лебедев, В.И. Копылов. *ФТТ* **42**, 1034 (2000).
- [13] Г.А. Малыгин. *ФММ* **63**, 864 (1987).
- [14] Ударные волны и явления высокоскоростной деформации металлов / Ред. М.А. Мейерс, Л.Е. Мурр. *Металлургия*, М. (1984). 512 с. [Shock waves and high-strain-rate phenomena in metals / Eds M.A. Meyers, L.E. Murr. Plenum, N.Y. (1981)].