

## Исследование процессов разупрочнения в монокристаллических лентах вольфрама

© Л.Н. Пронина, А.А. Мазилкин, И.М. Аристова

Институт физики твердого тела Российской академии наук,  
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

(Поступила в Редакцию 20 мая 1997 г.

В окончательной редакции 15 сентября 1997 г.)

Исследовались процессы возврата в деформированных прокаткой монокристаллах вольфрама (001)[110] различной степени чистоты. Показано, что образовавшаяся при пластической деформации монокристаллов вольфрама дислокационная структура преобразуется при последующих высокотемпературных отжигах в систему дислокационных субграниц; при этом в образцах при нагреве до температуры, близкой к температуре плавления, происходит лишь полигонизация, сохраняющая их монокристаллическую структуру. Процесс образования субграниц проходит в два этапа с последовательным преобразованием нестабильной структуры в конфигурацию, обладающую минимумом энергии. Определяющим фактором, влияющим на скорость полигонизации, является величина энергии дефекта упаковки; существенное влияние оказывает также присутствие примесей.

Процессы возврата в сильно деформированных монокристаллах тугоплавких ОЦК-металлов были изучены нами на примере молибдена и ниобия [1–3]. Было показано, что специальным образом деформированные монокристаллы молибдена сохраняют свою монокристаллическую структуру при высокотемпературных отжигах. Дислокационный возврат в этих монокристаллах проходит в несколько стадий, причем при отжиге монокристаллов молибдена продолжительностью 3 min при температуре 2000°C образуется структура из параллельных краевых дислокаций  $a[001]$ , идентичная структуре, получаемой в результате продолжительного (2 h) отжига при той же температуре. Представляется интересным сравнить полученные данные по молибдену с данными о поведении при нагреве других тугоплавких ОЦК-металлов. Данная работа посвящена изучению процессов возврата в монокристаллических лентах вольфрама различной степени чистоты.

### 1. Методика

Исследовались монокристаллы вольфрама с ориентацией оси роста [110], выращенные методом электронно-лучевой зонной плавки, с отношением электросопротивлений  $R_{300\text{K}}/R_{4.2\text{K}} = RRR = 50\,000$  и  $200\,000$ . Образцы для прокатки вырезались электро-эрозионным способом, механически шлифовались и полировались в растворе NaOH. Исследование проводилось на монокристаллах, плоскость и направление прокатки которых были (001)[110]. Степень деформации прокатанных монокристаллов составляла  $\sim 80\%$ . Отклонение от заданной ориентации контролировалось методом Лауэ и составляло не более  $3^\circ$ . Отжиг образцов осуществлялся пропусканием тока в безмасляном вакууме  $10^{-8}$  Торр при температуре 2300°C. Образцы для электронной микроскопии готовились методом струйной электролитической полировки в 1.5% раство-

ре NaOH. Электронно-микроскопические исследования проводились на электронных микроскопах JEM-100CX и JEM-2000FX.

### 2. Результаты

1) Структура после деформации. В предыдущей работе [4] авторами была подробно изучена структура, формирующаяся в результате деформации прокаткой монокристаллов вольфрама (001)[001]. Было показано, что присутствующие в структуре монокристаллов с суммарным обжатием  $\varepsilon = 0.5\%$  винтовые дислока-

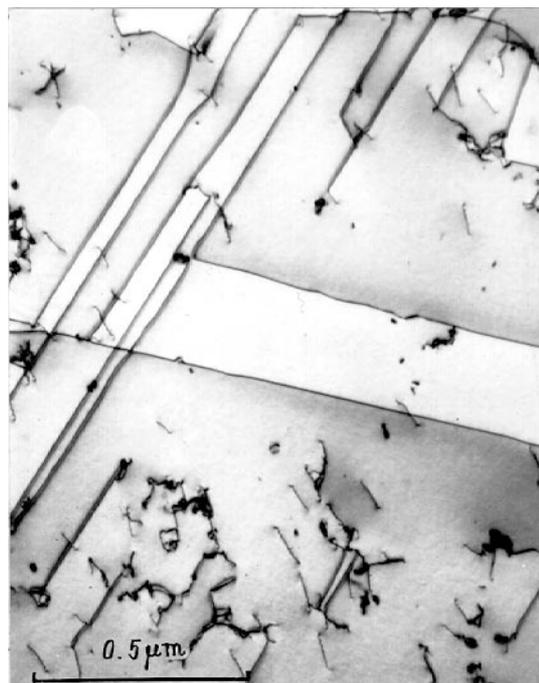
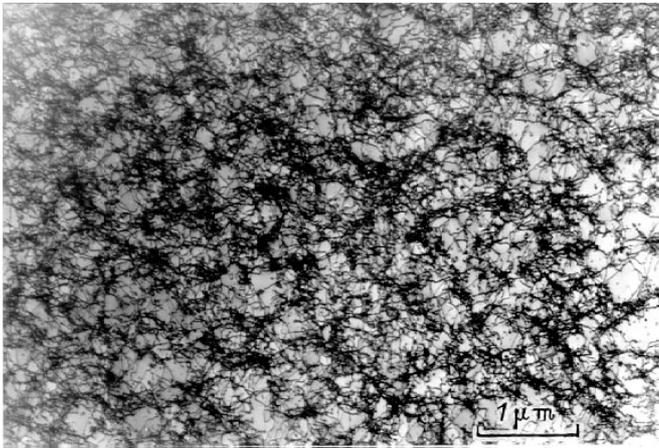
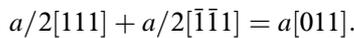


Рис. 1. Структура слабо деформированного монокристалла вольфрама ( $\varepsilon = 0.5\%$ ).



**Рис. 2.** Структура монокристалла, прокатанного до степени суммарного обжатия 80%.

ции  $a/2\langle 111 \rangle$  образуют плоскую дислокационную сетку в результате взаимодействия по реакции (рис. 1)



Увеличение деформации приводит к развитию процессов поперечного скольжения как механизма преодоления возникающих барьеров  $a\langle 001 \rangle$  и как следствие к формированию объемной дислокационной сетки.

В результате прокатки до степени обжатия  $\varepsilon = 80\%$  образцы вольфрама  $(001)[110]$  сохраняют монокристаллическую структуру исходной ориентации с однородным распределением дислокаций (рис. 2). Такая структура характерна для деформированных монокристаллов тугоплавких ОЦК-металлов данной ориентации, что связано с действием продольных систем скольжения  $(10\bar{1})[111]$ ,  $(101)[\bar{1}\bar{1}1]$ ,  $(01\bar{1})[111]$ ,  $(011)[\bar{1}\bar{1}1]$ .

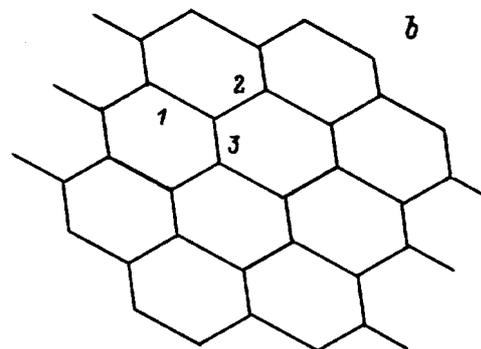
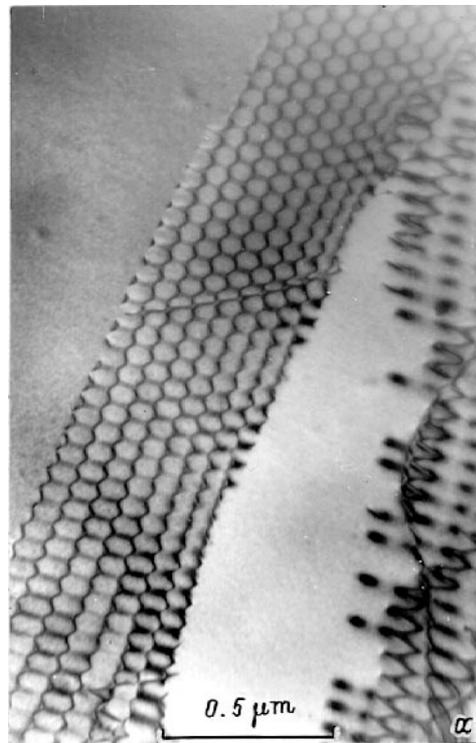
2) Структура формирующаяся в результате отжига. В результате высокотемпературного отжига дислокационная структура, сформировавшаяся в монокристаллах вольфрама  $(001)[110]$  при прокатке, преобразуется в систему дислокационных субграниц, различных по строению и составу, при этом материал остается монокристаллическим и сохраняет исходную кристаллографическую ориентацию.

Нагрев прокатанных монокристаллов вольфрама с отношением электросопротивлений 50 000 уже в течение 10 с до  $2300^\circ\text{C}$  приводит к образованию в них субграниц. Часть субграниц представляет собой дислокационные сетки. Наблюдаются сетки двух типов: 1) гексагональная сетка, состоящая из двух семейств дислокаций типа  $a/2\langle 111 \rangle$ , в точках пересечения которых образуются дислокации с векторами Бюргера  $a[001]$  (рис. 3); 2) сетка, образовавшаяся на пересечении двух семейств дислокаций с  $b = a\langle 100 \rangle$ : в местах их пересечения можно было бы ожидать образования сегментов дислокаций  $a\langle 110 \rangle$ , однако, поскольку дислокации с таким вектором Бюргера не обладают устойчивостью в ОЦК-структуре, при этом

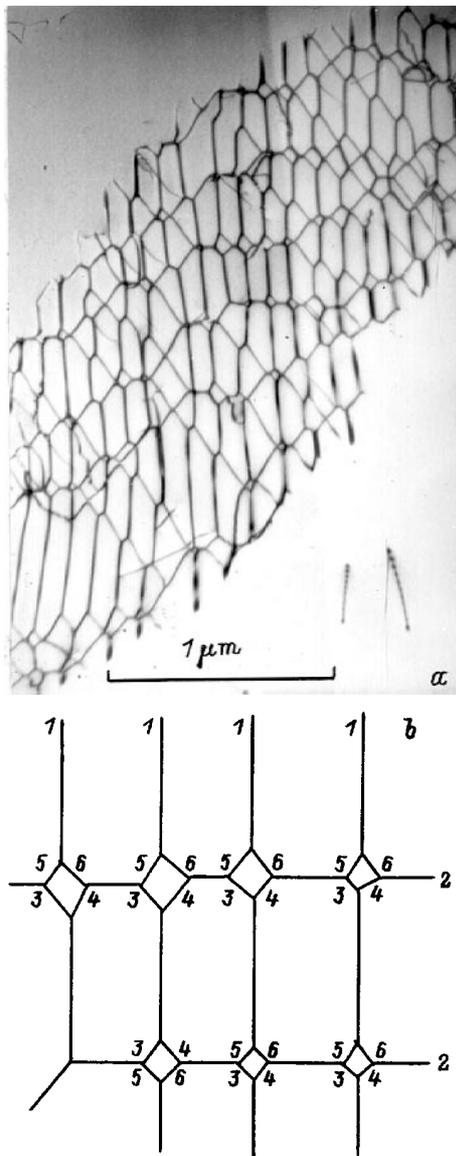
образуется связка из четырех тройных узлов, в каждом из которых одна из дислокаций  $a\langle 100 \rangle$ , а две других —  $a/2\langle 111 \rangle$  (рис. 4).

Дислокации, входящие в состав этих сеток, имеют краевую или смешанную ориентацию, а сами сетки являются субграницами смешанного типа.

В структуре наблюдается также другой тип субграниц (рис. 5). Анализ поведения дифракционного контраста на дислокациях, из которых состоит субграница, позволяет сделать вывод о том, что эти дислокации являются краевыми с вектором Бюргера  $a[001]$ , а субграница представляет собой вертикальную стенку из краевых дислокаций, являющуюся границей наклона. Линии дислокаций вытянуты в направлении, совпадающем с направлением прокатки  $[110]$ .



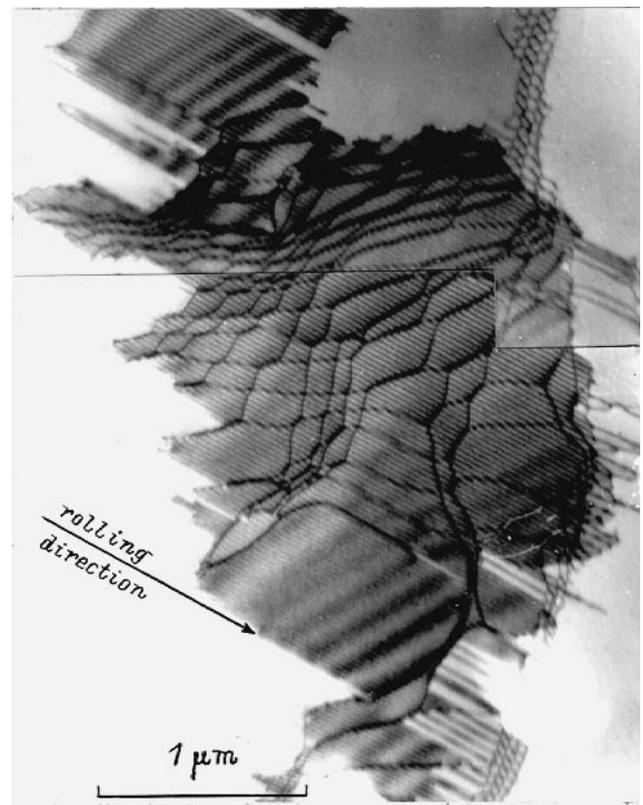
**Рис. 3.** а) Гексагональная сетка в вольфраме после прокатки и отжига.  $RRR = 50\ 000$ ,  $2300^\circ\text{C}$ , 10 с. б) Схема субграницы с анализом векторов Бюргера дислокаций:  $b_1 = a[001]$ ,  $b_2 = a/2[\bar{1}\bar{1}1]$ ,  $b_3 = a/2[111]$ .



**Рис. 4.** а) Дислокационная субграница в вольфраме после прокатки и отжига, содержащая связи из четырех тройных узлов.  $RRR = 50\,000$ ,  $2300^\circ\text{C}$ , 10 s. б) Схема субграницы с анализом векторов Бюргера дислокаций:  $b_1 = a[001]$ ,  $b_2 = a[100]$ ,  $b_3 = a/2[\bar{1}11]$ ,  $b_4 = a/2[1\bar{1}1]$ ,  $b_5 = a/2[11\bar{1}]$ ,  $b_6 = a/2[1\bar{1}\bar{1}]$ .

Структура после отжига длительностью 60 s состоит преимущественно из стенок длинных краевых дислокаций  $a[001]$ , и в ней практически отсутствуют дислокационные сетки.

Исследование структуры монокристаллов вольфрама с отношением  $RRR = 200\,000$  показало, что в них уже при отжигах самой малой длительности (до 3 s) образуются субграницы наклона. Они состоят из длинных, параллельно расположенных краевых дислокаций  $a[001]$  и идентичны тем, которые наблюдались в монокристаллах с  $RRR = 50\,000$  (рис. 6). Стадия образования дислокационных сеток отсутствует.



**Рис. 5.** Субграница наклона в вольфраме после прокатки и отжига.  $RRR = 50\,000$ ,  $2300^\circ\text{C}$ , 10 s.



**Рис. 6.** Субграница наклона в вольфраме после прокатки и отжига.  $RRR = 200\,000$ ,  $2300^\circ\text{C}$ ,  $\sim 3$  s.

### 3. Обсуждение результатов

В монокристаллах вольфрама формирование структуры включает в себя стадию образования дислокационных сеток. Известно, что устойчивость дислокационных границ связана с создаваемыми ими полями напряжений. Имеющиеся расчеты [5] показывают, что стабильными дислокационными границами могут быть стенки краевых дислокаций, представляющие собой границы наклона, или сетки из чисто винтовых дислокаций, являющиеся границами кручения, поскольку у них отсутствуют дальнедействующие поля напряжений. Сетки, образующиеся в результате отжига монокристаллов вольфрама, согласно тем же расчетам, неравновесны (не обладают минимумом энергии) из-за значительной краевой составляющей у входящих в ее состав дислокаций и с увеличением времени отжига преобразуются в конфигурацию с минимумом энергии — стенки краевых дислокаций.

Перестройка дислокационной структуры при полигонизации включает в себя скольжение в плоскости сдвига, переползание краевых компонент в соседние плоскости и поперечное скольжение винтовых компонент. Скорость всего процесса лимитируется, очевидно, переползанием, т. е. притоком вакансий к дислокациям или возникновением новых вакансий на дислокациях. Легче всего вакансии присоединяются к дислокации (или образуются) на ступеньках. Поэтому большая концентрация ступенек на дислокациях облегчает процесс полигонизации. Поскольку переползание — термически активируемый процесс [6], скорость полигонизации  $v_p$  можно определить следующим выражением:

$$v_p \sim \exp(-Q_p/kT), \quad (1)$$

где  $Q_p = Q_j + Q_f + Q_m$  — энергия активации процесса полигонизации. В последнем выражении  $Q_j$  — энергия активации образования ступеньки,  $Q_f$  — энергия активации образования вакансии,  $Q_m$  — энергия активации миграции вакансий. Сумма  $Q_f + Q_m$  равна энергии активации самодиффузии.

Величины энергии активации самодиффузии для молибдена, вольфрама и ниобия приведены в таблице [7]. В таблице приведены также значения энергии дефекта упаковки  $\gamma$ . Величины  $\gamma$ , полученные различными исследователями для одного и того же материала, различаются, что связано, видимо, с особенностями метода определения, однако общим для них является то, что в ряду Nb–Mo–W величина энергии дефекта упаковки воз-

растает. В таблице приведены значения  $\gamma$ , полученные Хартли из теоретических расчетов [8].

Металл	$Q_f + Q_m$ , kJ/mol	$\gamma$ , erg/cm <sup>2</sup>
Nb	397.7	150
Mo	464.7	430
W	641	500

растает. В таблице приведены значения  $\gamma$ , полученные Хартли из теоретических расчетов [8].

Представляет интерес провести сравнение полученных данных с данными исследований, проведенных на монокристаллических лентах молибдена и ниобия [1–3]. Для всех трех материалов характерно образование стенок из краевых дислокаций с вектором Бюргерса  $a[001]$ . Время, за которое полигонизация полностью протекает в молибдене, составляет порядка 3 min. В ниобии даже за время отжига больше 2 h наряду со стенками наблюдаются также дислокационные сетки. Если в выражении для скорости полигонизации (1) учитывать только энергию активации самодиффузии, тогда скорость полигонизации в ниобии должна быть наибольшей и уменьшаться при переходе к молибдену и вольфраму, что, однако, противоречит полученным результатам. Следовательно, в (1) определяющую роль играет энергия активации образования ступеньки  $Q_j$ . Известно, что величина  $Q_j$  связана с энергией дефекта упаковки материала  $\gamma$ : она тем меньше, чем больше  $\gamma$ . Равновесная концентрация ступенек на дислокациях зависит от температуры также по экспоненциальному закону

$$n_j \sim \exp(-Q_j/kT). \quad (2)$$

При большой  $Q_j$  уменьшается концентрация ступенек; следовательно, сокращается число образующихся на них вакансий и уменьшается скорость полигонизации, связанная с переползанием дислокаций. С другой стороны, величина энергии дефекта упаковки определяет ширину расщепления дислокаций. Растянутая дислокация может скользить лишь в плоскости дефекта упаковки. Чтобы произошел переход из одной плоскости скольжения в другую, необходимо предварительное стягивание частичных дислокаций в единичную. Это осложняет поперечное скольжение и, следовательно, уменьшает скорость полигонизации, особенно если энергия дефекта упаковки мала.

Известно также, что на диффузионные процессы и, в частности, полигонизацию большое влияние оказывает присутствие примесей. В том случае, если имеется небольшая концентрация малоподвижной примеси, которая имеет высокую энергию связи с вакансиями, не все вакансии смогут свободно перемещаться; некоторые из них окажутся "захваченными" атомами примеси. Образующиеся вокруг дислокаций атмосферы примесей затрудняют движение дислокаций, а также могут приводить к уменьшению энергии дефекта упаковки. Необходимо также учесть роль ступенек: при взаимодействии примесей со ступеньками, более сильно, чем с остальной частью дислокаций, ступеньки, адсорбирующие примеси, теряют свою эффективность как источники и стоки вакансий, и скорость переползания уменьшается [6].

Результаты по исследованию процесса отжига высокочистых монокристаллов вольфрама подтверждает тот известный факт, что на диффузионные процессы большое влияние оказывают присутствие примесей. Образующиеся вокруг дислокаций атмосферы примесей затрудняют

их движение, и в монокристаллах с  $RRR = 50\,000$  мы наблюдаем две стадии процесса полигонизации, в то время как в монокристаллах с отношением электросопротивлений  $RRR = 200\,000$  промежуточная стадия не фиксируется из-за более высокой скорости полигонизации.

Авторы выражают свою глубокую благодарность доктору профессору Г. Готтштейну (Dr. Prof. G. Gottstein) как за плодотворную дискуссию и полезные замечания к работе, так и за предоставленную возможность проведения экспериментов на электронном микроскопе в Институте металловедения и металлофизики, Аахен, Германия (Institut für Metallkunde and Metallphysik, RWTH, Aachen).

Авторы также благодарны Немецкому научному обществу (Deutsche Forschungsgemeinschaft) и Российскому фонду фундаментальных исследований (грант РФФИ 96-02-17536) за оказание финансовой поддержки.

## Список литературы

- [1] L.N. Pronina, S. Takeuchi, K. Suzuki, M. Ichihara. *Phil. Mag.* **A45**, 5, 859 (1982).
- [2] Л.Н. Пронина, И.М. Аристова. *ФТТ* **35**, 10, 2701 (1993).
- [3] Л.Н. Пронина, М.В. Баязитова, А.А. Мазилкин. *ФТТ* **38**, 3, 792 (1996).
- [4] Л.Н. Пронина, И.М. Аристова, А.А. Мазилкин. *ФТТ* **38**, 3, 800 (1996).
- [5] J.C.M. Li. In: *Electron Microscopy and Strength of Crystals*. N.Y. (1963). P. 713–779.
- [6] Дж. Хирт, И. Лоте. *Теория дислокаций*. Пер. с англ. Атомиздат, М. (1972). 600 с.
- [7] *Diffusion in Solid Metals and Alloys* // Ed. H. Mehrer. Springer Verlag (1990). 747 p.
- [8] C.S. Hartley. *Acta Met.* **14**, 9, 1133 (1966).