

АНОМАЛЬНОЕ ЗАТУХАНИЕ УЛЬТРАЗВУКА В СПЛАВАХ С ГЕТЕРОФАЗНЫМИ ФЛУКТУАЦИЯМИ

Ю.Н.Горностырев, М.И.Кацнельсон, А.В.Трефилов*

Институт физики металлов
620219 Екатеринбург, Россия

*Российский научный центр "Курчатовский институт", Москва
123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 5 июля 1994 г.

Предложен механизм затухания ультразвука в системах с мелкодисперсными включениями низкосимметричной фазы или с областями с развитым ближним порядком, который основан на рассмотрении термоактивационных переходов этих областей между различными "вакуумными" состояниями в поле ультразвуковой волны. Дано объяснение соответствующих экспериментальных данных для сплавов Ti-Fe и Cu-Mn.

Метастабильные сплавы переходных металлов на основе титана и циркония демонстрируют ряд необычных черт. Одна из ярких и до сих пор не объясненных особенностей этих систем состоит в большом значении затухания ультразвука в определенной области составов ($\Gamma \approx 8$ дБ/см на частоте 10 МГц и 21 дБ/см для 25 МГц в $Ti_{1-x}Fe_x$ при $x \approx 0,07$) [1]. Рост затухания (при $x \approx 0,07-0,10$ для $Ti_{1-x}Fe_x$) наблюдается в той же области концентраций, что и высокорезистивное состояние с отрицательным температурным коэффициентом сопротивления и не связан напрямую со структурным $\alpha(\text{ГПУ})-\beta(\text{ОЦК})$ фазовым переходом, от которого он отделен по концентрации. Настоящая работа посвящена объяснению этого явления на основе картины электронного и структурного состояния титановых сплавов, предложенной в [2].

Как обсуждалось в [2], определяющей чертой этого состояния является наличие многочисленных (до 30-40% объема) чрезвычайно мелких (размерами 20 - 50 Å) частиц ω -фазы, образующих некую сверхструктуру. Точнее, эти частицы по существу представляют собой области ближнего " ω -подобного" порядка. Мы будем использовать для таких систем предложенный М.А.Кривоглазом термин "гетерофазные флуктуации" [3]. Исходя из результатов экспериментов по рассеянию нейтронов, рентгеновского и мессбауэровского излучения в сплавах Zr-Nb и полного подобия структурных свойств циркониевых и титановых сплавов, эти флуктуации принято считать динамическими с характерным временем $10^{-11} \text{с} < \tau \ll 10^{-7} \text{с}$ (см. обзор [4]). Однако при рассмотрении распространения ультразвука с частотой $\omega \leq 10^7 \text{с}^{-1} \ll 1/\tau$ гетерофазные флуктуации можно считать статическими, с искажениями решетки, соответствующими среднему по времени от смещений плоскостей {111}, что проявляется как "несовершенство" ω -фазы (см. [5]). Существенно, что эти искажения могут происходить в четырех направлениях типа (111). Поскольку речь идет о частицах небольших размеров, то энергетические барьеры, разделяющие эти четыре потенциальные ямы, конечны и следует учитывать, вообще говоря, переходы между ними. В этом смысле ситуация аналогична явлению суперпарамагнетизма для малых однодоменных частиц [6]. Мы рассмотрим механизм поглощения ультразвука, обусловленный такими переходами, и покажем, что результаты

[1] могут быть качественно объяснены при разумных предположениях о высоте барьеров между ямами.

Общее выражение для затухания ультразвука Γ на системе "многоямных" областей определяется в модели ϵ линейной релаксацией известным выражением [7]

$$\Gamma = \frac{1}{2c} \frac{\Delta}{(1 + \Delta)^{1/2}} \frac{\omega^2 \tau_r}{1 + \omega^2 \tau_r^2}, \quad (1)$$

где c - скорость звука, $\tau_r = \tau(1 + \Delta)^{-1/2}$, τ - время релаксации

$$\tau^{-1} = \tau_0^{-1} \exp\left(-\frac{H}{T}\right), \quad (2)$$

H - высота барьера между ямами, $\Delta = \delta J / J_u$, $\delta J = J_r - J_u$, J_r, J_u - релаксированная и нерелаксированная податливости, соответственно. Для кубической симметрии матрицы в пренебрежении объемной релаксацией зависимость δJ от направляющих косинусов γ_i ультразвуковой волны относительно осей куба имеет вид [7].

$$\delta J = \delta J_{\langle hkl \rangle} + 3(\delta J_{\langle 111 \rangle} - \delta J_{\langle 100 \rangle})(\gamma_1^2 \gamma_2^2 + \gamma_1^2 \gamma_3^2 + \gamma_2^2 \gamma_3^2), \quad (3)$$

где $\delta J_{\langle hkl \rangle}$ - релаксация податливости для направления $\langle hkl \rangle$. При этом, в случае выделений ω -фазы со смещением плоскостей в направлениях типа $\langle 111 \rangle$ $\delta J_{\langle 100 \rangle} = 0$. При расчете $\delta J_{\langle 111 \rangle}$ для простоты будем использовать модель, в которой области ω -фазы имеют форму эллипсоида вращения, вытянутого в направлении $\langle 111 \rangle$. Деформация $\beta - \omega$ -превращения в главных осях эллипсоида имеет вид $\epsilon_{ij}^0 = \text{diag}(\lambda, -\lambda/2, -\lambda/2)$, $\epsilon_{ii}^0 = 0$ при условии сохранения объема. Тогда релаксация податливостей при повороте осей эллипсоидов из одного направления $\langle 111 \rangle$ в другое под влиянием ультразвука в приближении самосогласованного поля может быть представлена в виде (ср. с [7])

$$\delta J_n = \sum_{pq} \left[\frac{4T}{\Omega_0 f} + \tilde{V}_{pq} \right]^{-1} \lambda_p \lambda_q, \quad (4)$$

где Ω_0 - объем на атом, f - объемная доля ω -областей в β -матрице, $\lambda_p = \sum_i \beta_i^2(p) \lambda_i$, β_i - направляющие косинусы между главными осями тензора $\epsilon_{ij}^0(p)$ и вектором n ($1 \leq p \leq 4$ нумерует оси типа $\langle 111 \rangle$),

$$\tilde{V}_{pq} = V_{pq} - \frac{1}{4} \sum_p V_{pq}, \quad (5)$$

V_{pq} - фурье-компонента энергии взаимодействия выделений p и q типов (см. [8]) при $k = 0$, соответствующая вкладу сил "изображения". Максимальное собственное значение матрицы $-\Omega_0 f \tilde{V}_{pq} / 4$ совпадает с температурой потери устойчивости однородного состояния относительно ориентационного упорядочения выделений. Простая оценка дает $\Omega_0 \|\tilde{V}_{pq}\| < \Omega_0 J_u^{-1} \lambda^2 \ll T = 300 \text{ К}$ при $\lambda = (1 \div 5) \cdot 10^{-2}$ и, следовательно, взаимодействием выделений друг с другом можно пренебречь. Тогда

$$\delta J_{\langle 111 \rangle} = \frac{\Omega_0 f \lambda^2}{3T}. \quad (6)$$

Полагая $\lambda = 3,6 \cdot 10^{-2}$, $f \approx 0,3$, $\Omega_0/J_u \approx 3\text{эВ}$ (J_u^{-1} порядка величины модуля Юнга [7]), $T = 300\text{К}$, получаем $\Delta \approx 0,016$, что дает для максимума поглощения ($\omega\tau_r \approx 1$) достаточно большое относительное затухание $c\Gamma/\omega \sim 4 \cdot 10^{-3}$, совпадающее по порядку величины с экспериментальным [1]. Отметим, что солитонная модель $\beta - \omega$ -превращения дает переход к несовершенной ω -фазе при $\lambda = 5 \cdot 10^{-2}$, однако экспериментальные данные свидетельствуют о меньших значениях λ (см. [9]).

Принимая во внимание, что $\Delta \ll 1$, а $H = H_0 N$, где H_0 - высота барьера в расчете на одну ячейку, N - число ячеек в области ω -фазы, и вводя функцию распределения $P(N)$ по размерам областей, получаем из (1)-(3),(6):

$$\Gamma = \frac{\Omega_0 f \lambda^2}{2c J_u T} (\gamma_1^2 \gamma_2^2 + \gamma_1^2 \gamma_3^2 + \gamma_2^2 \gamma_3^2) \int dN P(N) \frac{\omega^2 \tau_0 \exp(H_0 N/T)}{1 + \omega^2 \tau_0^2 \exp(2H_0 N/T)}. \quad (7)$$

Экспериментальная зависимость Γ от ω в диапазоне $\omega \approx 10^7 - 10^{11}\text{с}^{-1}$ при $T \approx 300\text{К}$ является промежуточной между $\Gamma \sim \omega^2$ для случая $\omega\tau \ll 1$ и $\Gamma \sim \text{const}$ при $\omega\tau \gg 1$ (см.[1]). Поэтому естественно предположить, что для наиболее вероятного значения N_0 и $\tau_0 \approx 10^{-12}\text{с}^{-1}$ $\exp(H_0 N_0/T) \approx (\omega\tau_0)^{-1} \approx 10^4$, что для $N_0 \approx (10 - 30)$ дает $H_0 \approx 300 - 100\text{К}$. Эта оценка выглядит достаточно разумной, поскольку H_0 должна быть заведомо ниже, чем высота барьера для $\omega - \beta$ -перехода, а последняя согласно расчету¹⁰ для Zr при $T = 0$ порядка 500К . Иными словами, согласно предлагаемой модели, аномальное затухание ультразвука в титановых и циркониевых сплавах связано именно с гетерофазными флуктуациями, то есть с областями, содержащими небольшое число ячеек ω -фазы, а не с крупными выделениями ($N \sim 10^2 - 10^3$), которые также могут существовать в этих сплавах [11]. Последние могут давать вклад в затухание ультразвука, обусловленный динамикой межфазных границ, который возможно доминирует в непосредственной окрестности $\alpha - (\beta + \omega)$ -перехода (первый максимум на концентрационной зависимости $\Gamma(x)$ при $x \approx 0,05$ в $Ti_{1-x}Fe_x$ [1] может быть связан именно с такими процессами).

Формула (7) предсказывает определенную угловую зависимость $\Gamma(\gamma_i)$ с максимумом в направлении типа $\langle 111 \rangle$ и минимумом в направлении типа $\langle 100 \rangle$. Этот результат может быть проверен в экспериментах на монокристаллах.

Предложенный механизм затухания ультразвука может иметь место в других системах с гетерофазными флуктуациями. Так, хорошо известны эффекты сильного ближнего порядка в сплавах $Cu-Mn$ выше температуры ГЦТ-ГЦК-перехода, описываемые как области тетрагональных искажений решетки размером $20 - 30 \text{ \AA}$ [12]. В то же время в этих сплавах наблюдаются яркие аномалии затухания ультразвука вблизи точки перехода [13]. По нашему мнению, этот рост затухания мог бы быть объяснен в рамках предложенной модели (при $\delta J_{\langle 111 \rangle} = 0$, $\delta J_{\langle 100 \rangle} \neq 0$, то есть с угловой зависимостью $1 - 3(\gamma_1^2 \gamma_2^2 + \gamma_1^2 \gamma_3^2 + \gamma_2^2 \gamma_3^2)$ вместо (6)) за счет процессов с переориентацией тетрагональных осей. Можно предположить, что в этом случае $f(T)$ резко возрастает при $T \rightarrow T_c$, что могло бы объяснять максимум $\Gamma(T)$ вблизи T_c [13]. Близкая идея высказывалась в [14].

Подчеркнем еще раз, что наиболее существенным обстоятельством в рассматриваемой модели является небольшая высота барьера H_0 (мартенситный характер превращения) и малость размеров областей. В подобных же системах любое искажение решетки будет динамическим из-за тепловых переходов между "вакуумами", соответствующими низкосимметричной фазе.

Настоящее исследование стало возможным частично благодаря поддержке Международного научного фонда, грант RGQ000.

-
1. А.С.Шербаков, М.И.Кацнельсон, А.В.Трефилов и др., Письма в ЖЭТФ **44**, 393 (1986); Е.Н.Булатов, Дисс. канд. физ. мат. наук Свердловск 1987.
 2. М.И.Кацнельсон, А.В.Трефилов, Письма в ЖЭТФ **59**, 191 (1994).
 3. М.А.Кривоглаз, Диффузное рассеяние рентгеновских лучей и нейтронов на флуктуационных неоднородностях в неидеальных кристаллах. Киев: Наукова думка, 1984.
 4. М.И.Кацнельсон, А.В.Трефилов, ФММ **64**, 629 (1987).
 5. W.Lin, H.Spalt, and B.W.Batterman, Phys. Rev. **B13**, 5158 (1976).
 6. С.В.Вонсовский, Магнетизм. М.: Наука, 1971.
 7. Б.Берри, А.Новик, В сб. Физическая акустика, т.3, ч.А, М.: Мир, 1969, под ред. У. Мэзона, с.11.
 8. А.Г.Хачатурян, Теория фазовых превращений и структура твердых растворов. М.: Наука, 1974.
 9. S.K.Sikka, Y.K.Vohra, and R.Chidambaram, Progr. Mater. Sci. **27**, 245 (1982).
 10. K.-M.Ho, C.L.Fu, and B.N.Harmon, Phys. Rev. **29**, 1575 (1984).
 11. C.B.Walker, Phys. Rev. **B28**, 674 (1973).
 12. Е.З.Витайкин, В.М.Сахно, В.А.Удовенко, ДАН СССР **246**, 315 (1979).
 13. Y.Tsunoda, N.Orishi, and N.Kunitomi, J. Phys. Soc. Japan **53**, 359 (1984).
 14. В.А.Удовенко, Дисс. докт. физ.мат. наук М.: 1987.