

Неньютоновская деформация металлического стекла на основе кобальта при низких напряжениях

© В. Оцелик**, Ю.В. Фурсова*, В.А. Хоник*,***, К. Чах**

* Воронежский государственный педагогический университет,
394043 Воронеж, Россия

** Институт экспериментальной физики Словацкой академии наук,
04353 Kosice, Slovakia

*** Университет Каназава,
920-8667 Kanazawa, Japan

E-mail: khonik@vspsu.ac.ru, khonik@t.kanazawa-u.ac.jp

(Поступила в окончательном виде 5 октября 1999 г.)

Представлены результаты прецизионных измерений ползучести металлического стекла на основе кобальта. Показано, что вопреки общепринятым представлениям пластическое течение при низких напряжениях в условиях интенсивной структурной релаксации является неньютоновским. Обсуждаются следствия этого факта.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Министерства общего и профессионального образования РФ в рамках гранта по фундаментальному естествознанию (шифр 97-0-7, 0-161).

Реологические свойства металлических стекол (МС) представляют интерес как с чисто научной, так и с практической точек зрения. Попытки определить, является ли пластическое течение линейным ньютоновским или нелинейным, стали предприниматься вскоре после открытия металлических стекол [1,2]. В первом случае скорость сдвиговой пластической деформации $\dot{\epsilon}_s$ прямо пропорциональна приложенному сдвиговому напряжению σ_s , тогда как во втором случае зависимость напряжение–скорость деформации нелинейна.

Зависимость σ_s – $\dot{\epsilon}_s$ может быть описана с помощью сдвиговой вязкости, которая по определению есть

$$\eta = \sigma_s / \dot{\epsilon}_s = \sigma / 3\dot{\epsilon}, \quad (1)$$

где σ и $\dot{\epsilon}$ — растягивающее напряжение и скорость продольной деформации соответственно. С другой стороны, та же самая зависимость может быть охарактеризована так называемым коэффициентом скоростной чувствительности, определяемым как

$$m = \frac{\partial \ln \dot{\epsilon}_s}{\partial \ln \sigma_s} = 1 - \frac{\sigma_s}{\eta} \frac{\partial \eta}{\partial \sigma_s}. \quad (2)$$

Если вязкость, определяемая (1), не зависит от напряжения, пластическое течение является ньютоновским и $m = 1$. В противном случае ($\eta = f(\sigma_s)$) зависимость σ_s – $\dot{\epsilon}_s$ нелинейна и $m > 1$.

Первые эксперименты [1–4], выполнены на МС при температурах $T > 300$ К и низких сдвиговых напряжениях, показали, что пластическая деформация является ньютоновской, тогда как измерения при относительно высоких напряжениях (более 200–400 МПа в зависимости от температуры, тепловой предыстории и химического состава МС) указывали на нелинейное течение с $1 < m < 12$ [5–9].

В настоящее время считается, что именно такое поведение характерно для МС. Недавно, однако, мы провели прецизионные измерения ползучести [10], показавшие, что пластическое течение стекла на основе никеля при низких растягивающих напряжениях является неньютоновским и соответственно вязкость (1) зависит от напряжения. Возникает вопрос о том, в какой степени нелинейность пластического течения при низких напряжениях характерна для металлических стекол вообще. Для решения этого вопроса мы провели исследование магнитомягкого МС стандартного химического состава.

1. Методика эксперимента

Исследовалось промышленное МС $\text{Co}_{70}\text{Fe}_5\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ (at.%), полученное спиннингованием в виде ленты толщиной $48 \pm 5 \mu\text{m}$ и шириной $d = 21 \text{ mm}$. Некристалличность структуры контролировалась рентгеновским методом. Температура начала кристаллизации по данным дифференциальной сканирующей калориметрии (калориметр Rigaku-Denki DSC-8230) составила 762 К при скорости нагрева 3.3 К/min. Ползучесть измерялась в атмосфере проточного аргона в условиях растягивающей нагрузки с помощью термомеханического анализатора Setaram TMA92 с абсолютным разрешением около 10 nm. Образцы имели вид двойной лопатки и готовились посредством механического сошлифовывания части ленты в специальной оправке. Длина образцов составляла $l_0 = 15 \text{ mm}$, рабочая ширина — 1.2 mm. Температура испытаний была выбрана равной 675 К, что определялось, с одной стороны, стремлением провести измерения при максимально высокой температуре с целью увеличения скорости ползучести (и соответственно уменьшения ошибок расчета скорости деформации при

низких напряжениях), а с другой стороны, стремлением избежать кристаллизации в результате длительных изотермических выдержек. Образец нагревался до температуры испытания (поддерживавшейся в дальнейшем с точностью ± 0.2 К) со скоростью 10 К/мин без перегрева, отжигался при этой температуре в течение времени $\tau = 288 \pm 3$ с, нагружался растягивающим напряжением (определяемым с погрешностью около 15%), после чего начинались автоматические измерения удлинения Δl образца с помощью компьютера и расчет относительной деформации $\varepsilon = \Delta l/l_0$. Интервал между измерениями составлял 0.8 с непосредственно после нагружения и увеличивался затем пропорционально логарифму времени. Рентгеновские исследования испытанных образцов не выявили следов кристаллизации.

2. Результаты эксперимента

Первые эксперименты показали отсутствие приемлемой воспроизводимости результатов в случае приготовления образцов из участков, соответствующих произвольной координате X вдоль ширины ленты. Измерения ползучести образцов, приготовленных из семи участков с различными координатами $0 \leq X \leq d$, показали, что причиной является неоднородность свойств ленты. В результате этой неоднородности скорость роста вязкости при температуре испытания, характеризующая скорость структурной релаксации и соответственно структурное состояние ленты, может меняться при прочих одинаковых условиях на 40–50% в зависимости от X . С учетом этого последующие эксперименты проводились с использованием образцов, соответствующих постоянной координате X вдоль ширины ленты.

На рис. 1 показаны кривые ползучести, полученные при различных напряжениях $11 \leq \sigma \leq 72$ МПа. Как обычно, скорость ползучести сильно возрастает с увеличением приложенной нагрузки.

Стандартный способ ответить на вопрос о том, является ли течение ньютоновским, заключается в расчете коэффициента скоростной чувствительности в соответствии с уравнением (2). Для этого было произведено численное дифференцирование зависимости $\varepsilon(t)$ посредством расчета среднего наклона между i -й точкой, $\varepsilon_i(t_i)$, последующей, $\varepsilon_{i+1}(t_{i+1})$, и предыдущей, $\varepsilon_{i-1}(t_{i-1})$, точками. Затем, используя сечения полученных графиков

К определению коэффициента скоростной чувствительности по данным рис. 2

t, s	m	R	S
500	1.11	0.995	0.04
1000	1.12	0.995	0.04
2500	1.19	0.995	0.04
5000	1.17	0.994	0.04
10000	1.21	0.997	0.03

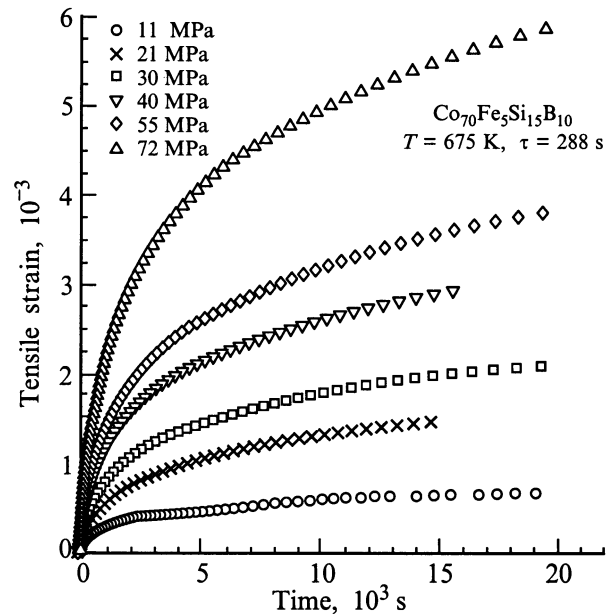


Рис. 1. Кинетика ползучести МС $\text{Co}_{70}\text{Fe}_5\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ при $T = 675$ К и различных напряжениях.

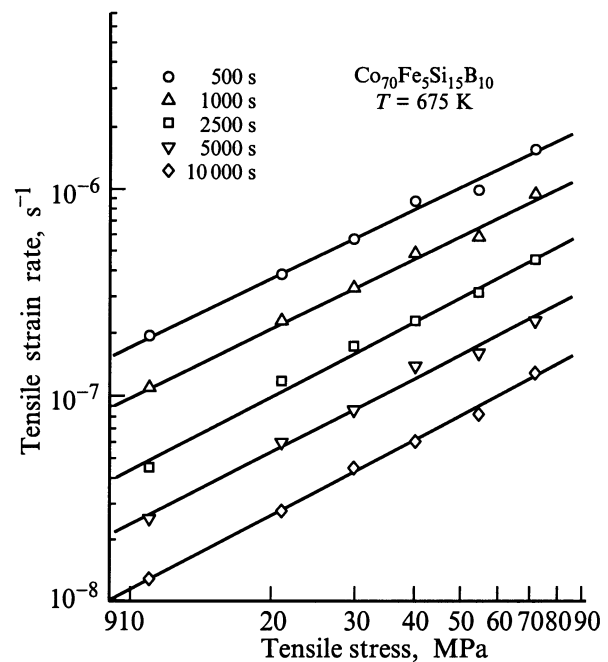


Рис. 2. Зависимости скорости деформации от напряжения для указанных моментов времени.

скорость деформации–время, были вычислены зависимости скорость деформации–напряжение для различных моментов времени t . Эти зависимости для $t = 500, 1000, 2500, 5000$ и $10\,000$ s показаны на рис. 2 в логарифмических координатах. Видно, что во всех случаях возможна хорошая линейная аппроксимация. Эта аппроксимация выполнялась по методу наименьших квадратов, после

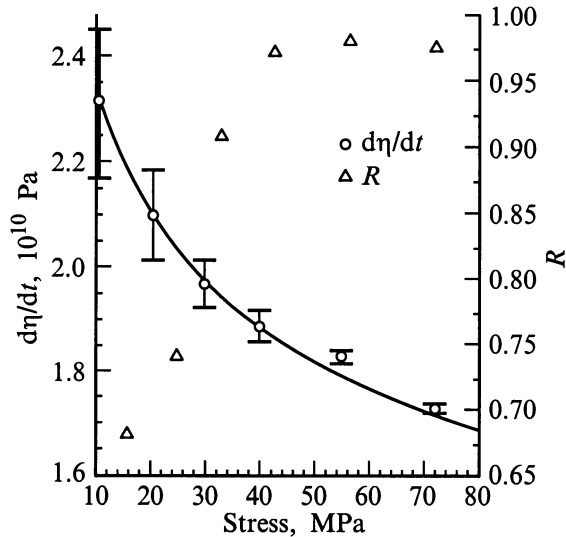


Рис. 3. Зависимости скорости роста сдвиговой вязкости и коэффициента парной корреляции от напряжения. Сплошная кривая соответствует степенному закону ползучести (6) при $m = 1.16$.

чего вычислялись коэффициент скоростной чувствительности m , коэффициент парной корреляции R , характеризующий степень отклонения зависимости $\ln \dot{\epsilon} - \ln \sigma$ от линейной, а также стандартное отклонение S . Значения этих величин представлены в таблице, откуда можно заключить, что зависимости $\ln \dot{\epsilon} - \ln \sigma$ являются линейными с коэффициентом парной корреляции $R \approx 0.995$ (в случае прямой линии $R = 1$) и стандартным отклонением $S \approx 0.04$. Среднее значение $m = 1.16$, что свидетельствует об отклонении пластического течения от ньютоновского. Этот вывод, однако, учитывая малость отклонения, требует дополнительной аргументации.

С другой стороны, ясно, что при наличии даже малой нелинейности более удобно анализировать не зависимости $\ln \dot{\epsilon} - \ln \sigma$, а кинетику вязкости, определяемую уравнением (1). Действительно, в этом случае вязкость будет зависеть от напряжения и различия вязкости образцов, нагруженных различными напряжениями, будут накапливаться во времени, позволяя более уверенно идентифицировать неньютоновское течение даже с небольшой нелинейностью.

Для реализации такого подхода была рассчитана кинетика роста вязкости при разных напряжениях. Было установлено, что в соответствии с многочисленными литературными данными (см., например, [11,12]) вязкость линейно растет со временем, за исключением начальных нескольких сотен секунд измерений, когда рост является более быстрым.¹ Зависимость скорости роста вязкости $d\eta/dt$ от напряжения представлена на рис. 3 (начальный нелинейный участок $\eta(t)$ в расчетах во внимание не принимался). Здесь же представлены ре-

¹ Такие же аномалии наблюдались нами ранее и в случае других МС [13–15].

зультаты вычисления коэффициента парной корреляции R . Главный вывод из рис. 3 вполне очевиден: кинетика роста вязкости зависит от напряжения. Это означает, что пластическая деформация является неньютоновской во всем исследованном интервале напряжений. При этом уменьшение стандартной ошибки определения $d\eta/dt$ и рост R с увеличением напряжения отражают уменьшение ошибок расчета скорости деформации вследствие общего увеличения деформации ползучести.

3. Обсуждение результатов

Ползучесть МС в исходном состоянии при температурах $T \geq 400$ К можно интерпретировать как структурную релаксацию, ориентированную приложенным напряжением [14,16,17]. Можно предположить, что обнаруженная нелинейность является характерной особенностью структурной релаксации МС. Действительно, как упоминалось выше, стандартный путь анализа зависимости скорости пластической деформации от напряжения заключается в построении графика $\ln \dot{\epsilon} - \ln \sigma$. Приведенный выше пример показывает, что такой анализ в случае небольшой нелинейности может давать недостаточно убедительный результат. Для идентификации нелинейности следует анализировать данные о кинетике вязкости, полученные при различных напряжениях.

Следует также отметить, что помимо небольшой нелинейности, обнаруженной в работе [10], указания на наличие нелинейности были обнаружены и в работе [18]. Анализ ползучести МС $\text{Pd}_{40}\text{Ni}_{40}\text{P}_{20}$ показал, что кинетика вязкости при температурах $453 \leq T \leq 568$ К при очень низких (1.6–6.6 МПа) и умеренных (60–100 МПа) напряжениях обнаруживает отчетливую зависимость от нагрузки (см. рис. 7 в работе [18]). Авторы этой работы рассчитали коэффициент скоростной чувствительности, оказавшийся равным $1.1 \leq m \leq 1.5$ в зависимости от температуры испытания. Этот факт, однако, не обсуждался в работе [18] вообще.

В рамках представлений [14,16,17] скорость сдвиговой пластической деформации при больших временах ($t \gg \tau$, где τ — время предварительного отжига при температуре испытания T) можно представить как

$$\dot{\epsilon}_s = \sigma_s k T N_0 \Omega C / t, \quad (3)$$

где k — постоянная Больцмана, N_0 — объемная плотность активных центров релаксации на единичный интервал энергий активации, Ω — объем, охватываемый элементарным актом структурной релаксации, C — параметр, характеризующий ориентирующее влияние внешнего напряжения на элементарные акты структурной релаксации. Если ни одна из величин N_0 , Ω и C не зависит от напряжения, то уравнение (3) дает ньютоновское течение с $m = 1$. Увеличение хотя бы одной из этих величин с ростом напряжения вызовет нелинейную

деформацию с коэффициентом скоростной чувствительности

$$m = 1 + \partial \ln N_0 \Omega C / \partial \ln \sigma_s > 1. \quad (4)$$

Из формулы (4) следует выражение для произведения $N_0 \Omega C$ в случае нелинейной деформации

$$N_0 \Omega C = A \sigma_s^{m-1}, \quad (5)$$

где $\ln A$ — постоянная интегрирования. Значение $m \approx 1.16$, определенное в настоящей работе, означает, что, согласно формуле (5), произведение $N_0 \Omega C$ возрастает при увеличении напряжения от $\sigma_1 = 11$ до $\sigma_2 = 72$ МПа в $(\sigma_2/\sigma_1)^{m-1} \approx 1.35$ раза.

С помощью формул (3)–(5) получаем выражения для скорости деформации

$$\dot{\epsilon}_s = \frac{kTA}{t} \sigma_s^m \quad (6)$$

и скорости роста вязкости при постоянной температуре

$$\dot{\eta} = \frac{1}{kTA} \sigma_s^{1-m}. \quad (7)$$

Из формулы (7) следует, что вязкость в соответствии с экспериментом линейно растет со временем, а скорость ее роста уменьшается с увеличением напряжения. Функциональная зависимость вида σ^{1-m} при $m = 1.16$ показана сплошной кривой на рис. 3, откуда видно, что соотношение (7) в пределах точности эксперимента правильно описывает зависимость $\dot{\eta}$ от напряжения. Отметим также, что формула (6) есть не что иное, как так называемый степенной закон, часто используемый для интерпретации экспериментов по пластическому течению МС (см., например, [19]). В случае ньютоновского течения формулы (3) и (6) эквивалентны и $A = N_0 \Omega C$.

Нелинейность пластического течения должна оказывать непосредственное влияние на низкочастотное ($f < 0.1$ –1 Hz) внутреннее трение, обусловленное структурной релаксацией МС. С использованием уравнения (3) можно показать, что внутреннее трение в этом случае является вязкопластическим и может быть описано в рамках простой двухэлементной реологической модели Максвелла [20–22]

$$Q^{-1} = G/\eta\omega, \quad (8)$$

где G — нерелаксированный модуль сдвига, ω — круговая частота, а зависящая от времени вязкость определяется из соотношения

$$\eta^{-1} = kTN_0\Omega C/t. \quad (9)$$

Из уравнений (5), (8) и (9) следует, что в случае ньютоновского течения внутреннее трение должно быть независимым от амплитуды измерительного напряжения (деформации). В противном случае нелинейность пластической деформации, возникающая при условии $N_0 \Omega C = f(\sigma_s)$, вызовет амплитудозависимое внутреннее трение.

Можно предсказать, таким образом, что в условиях нелинейности пластического течения низкочастотное внутреннее трение, обусловленное структурной релаксацией МС, будет амплитудозависимым. Подчеркнем, что экспериментально этот вопрос не исследован до сих пор.

Основные выводы настоящей работы можно сформулировать следующим образом.

1) Пластическое течение металлического стекла $\text{Co}_{70}\text{Fe}_5\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ при низких напряжениях является ньютоновским с коэффициентом скоростной чувствительности $m \approx 1.16$. Этот факт можно интерпретировать как результат зависимости от напряжения параметров структурной релаксации N_0 , Ω и/или C , определяющих кинетику пластического течения в соответствии с уравнением (3).

2) Структурная релаксация ньютоновских металлических стекол при низких частотах нагружения должна иметь своим следствием амплитудозависимое вязкопластическое внутреннее трение.

Авторы выражают благодарность рецензенту за полезные замечания.

Список литературы

- [1] H.S. Chen, D. Turnbull. *J. Chem. Phys.* **48**, 5, 2560 (1968).
- [2] T. Masumoto, R. Maddin. *J. Mater. Sci.* **19**, 1, 1 (1975).
- [3] J. Logan, M.F. Ashby. *Acta Met.* **22**, 6, 1047 (1974).
- [4] A.I. Taub, F. Spaepen. *Scr. Met.* **13**, 3, 195 (1979).
- [5] R. Maddin, T. Masumoto. *Mater. Sci. Eng.* **9**, 3, 153 (1972).
- [6] J.C. Gibeling, W.D. Nix. *Scr. Met.* **12**, 10, 919 (1978).
- [7] D. Lee. *Met. Trans.* **A12**, 3, 419 (1981).
- [8] T.D. Hadnagy, D.J. Krenitsky, D.G. Ast, Che-Yu Li. *Scr. Metall.* **12**, 1, 45 (1978).
- [9] J.P. Patterson, D.R.H. Jones. *Acta Met.* **28**, 6, 675 (1980).
- [10] K. Csach, Yu.V. Fursova, V.A. Khonik, V. Ocelik, *Scr. Mater.* **39**, 10, 1377 (1998).
- [11] A.I. Taub, F.E. Luborsky. *Acta Met.* **29**, 12, 1939 (1981).
- [12] A.I. Taub, F. Spaepen. *J. Mater. Sci.* **16**, 11, 3087 (1981).
- [13] А.Т. Косилов, В.А. Михайлов, В.А. Хоник, К. Чах. *ФММ.* **82**, 5, 172 (1996).
- [14] А.Т. Косилов, В.А. Михайлов, В.В. Свиридов, В.А. Хоник. *ФТТ* **38**, 11, 2008 (1997).
- [15] K. Csach, V.A. Khonik, A.T. Kosilov, V.A. Mikhailov. *Proc. 9th Int. Conf. on Rapid. Quench. Metastab. Mater. Bratislava, Slovakia / Ed. by P. Duhaj, P. Mrafko, P. Svec. Elsevier, Amsterdam (1997). Suppl., p. 357.*
- [16] А.Т. Косилов, В.А. Хоник. *Изв. РАН. Сер. физ.* **57**, 11, 192 (1993).
- [17] О.П. Бобров, А.Т. Косилов, В.А. Михайлов, В.А. Хоник. *Изв. РАН. Сер. физ.* **60**, 9, 124 (1996).
- [18] D. Deng, F. Zheng, Y. Xu, G. Qi, A.S. Argon. *Acta Met.* **41**, 4, 1089 (1993).
- [19] J.P. Patterson, D.R.H. Jones. *Acta Met.* **28**, 6, 1089 (1980).
- [20] В.И. Белявский, О.П. Бобров, А.Т. Косилов, В.А. Хоник. *ФТТ* **38**, 1, 30 (1996).
- [21] V.A. Khonik. *J. de Physique IV* **6**, C8-591 (1996).
- [22] Ю.В. Фурсова, В.А. Хоник. *Изв. РАН. Сер. физ.* **62**, 7, 1288 (1998).