

УДК 539.261

<http://doi.org/10.5281/zenodo.2539528>

**ПРИМЕНЕНИЕ ДИФРАКЦИОННОГО МЕТОДА  
ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ РАЗМЕРОВ СТРУКТУРНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ  
В ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКОМ ГАДОЛИНИИ**

©*Степаненко А. В.*, ORCID: 0000-0001-7804-8918, канд. физ.-мат. наук,  
Уральский федеральный университет им. первого Президента России Б.Н. Ельцина,  
г. Екатеринбург, Россия, [avstep@mail.ru](mailto:avstep@mail.ru)

**APPLICATION OF DIFFRACTION METHOD FOR DETERMINING THE DIMENSIONS  
OF STRUCTURAL ELEMENTS IN POLYCRYSTALLINE GADOLINE**

©*Stepanenko A.*, ORCID: 0000-0001-7804-8918, Ph.D.,  
Ural Federal University, Ekaterinburg, Russia, [avstep@mail.ru](mailto:avstep@mail.ru)

*Аннотация.* Размер структурных элементов в поликристаллических материалах, сформированный при термомеханической обработке, является одним из факторов, определяющих физико–механические свойства металлов и сплавов. Формирование кристаллографической текстуры и эволюция блочности кристаллической структуры еще мало изучены в редкоземельных металлах. В статье рассматривается дифракционный рентгеновский метод для изучения мозаичной кристаллографической структуры гадолиния. На основе анализа уширения дифракционных линий определен средний размер областей когерентного рассеивания  $\langle D \rangle_{HKL}$ . Результаты исследования могут служить основой для анализа физико–механических свойств образцов металла и изучения динамики структурных изменений в ходе термомеханической обработки.

*Abstract.* The size of the structural elements in polycrystalline materials formed during thermomechanical processing is one of the factors determining the physical and mechanical properties of metals and alloys. The formation of the crystallographic texture and the evolution of the blockiness of the crystal structure are still little studied in rare–earth metals. The article discusses the X-ray diffraction method for studying the mosaic crystallographic structure of gadolinium. Based on the analysis of the broadening of diffraction lines, the average size of coherent scattering regions  $\langle D \rangle_{HKL}$  was determined. The research results can serve as a basis for analyzing the physical and mechanical properties of metal samples and studying the dynamics of structural changes during thermomechanical processing.

*Ключевые слова:* поликристаллы, структура, деформация, редкоземельные металлы, дифракция, рентген, текстура.

*Keywords:* polycrystals, structure, deformation, rare-earth metals, diffraction, X-ray, texture.

Свойства поликристаллических материалов во многом определяются их микроструктурным состоянием, являющимся результатом термомеханической обработки материала при его производстве. При этом уменьшение размера зерен до

субмикроскопического размера позволяет получать металлические образцы с уникальными механическими, физическими и химическими свойствами. Размер структурных элементов в поликристаллах способен изменить их упругие свойства, существенно изменяет пластичность, благодаря чему становится возможным механическая обработка хрупких материалов и достижение больших степеней деформации. От размера зерен и субзерен ферромагнитных материалов зависят температура Кюри, намагниченность насыщения, величина коэрцитивной силы, динамические характеристики фазовых превращений, а в диамагнетиках и парамагнетиках размер зерен влияет на магнитную восприимчивость, значение теплоемкости и другие характеристики.

Изучение размера структурных элементов в металлах, выявление характера их распределения, установление динамических связей размера микроструктурных элементов со степенью деформации образцов при различных по своей симметрии схемах пластической деформации являются важными составляющими современных методик изготовления новых материалов [1]. На практике размеры структурных элементов могут быть определены различными способами [2–3]: сканирующая, просвечивающая и высокоразрешающая растровая электронная микроскопия, туннельная и атомно–силовая микроскопия, а также дифрактометрические методы рентгеноструктурного анализа. Из перечисленных методик наиболее удобным и простым для практической реализации в производственных условиях является рентгеноструктурный метод, получивший наибольшее распространение в заводских лабораториях.

Используя дифракцию рентгеновских лучей можно определить довольно широкий спектр характеристик поликристаллических материалов [4]: фазовый состав образца, строение кристаллитов, усредненный размер структурных элементов (областей когерентного рассеивания рентгеновских лучей, ОКР), морфологические параметры кристаллитов, распределение структурных элементов по размерам, а также установить распределение кристаллитов по кристаллографическим ориентировкам (текстурное состояние поликристалла).

В представляемой работе изучался профиль дифракционных максимумов при отражении рентгеновских лучей от поликристаллического образца. Рентгенографические измерения производились на серийном дифрактометре ДРОН-0,5, при этом использовалось отфильтрованное  $\text{Cu-K}\alpha$  излучение, регистрация излучения сцинтилляционным счетчиком с применением метода дифференциальной дискриминации.

Материалом исследования являлись поликристаллические образцы редкоземельного металла гадолиния, имеющего гексагональную плотноупакованную кристаллическую структуру (ГПУ). Для дифрактометрических расчетов использовались константы ГПУ–решетки кристаллитов:  $a=0,36336$  нм,  $c=0,57810$  нм [5]. Исходные образцами исследования являлись слитки высокочистого гадолиния, полученные методом электровакуумной плавки с последующей дистилляционной и кристаллизационной очистки. Степень чистоты поликристаллов Gd составила 99,99 мас.%, при этом содержание в образцах остаточных лигатур в мас.% не превышало: Si ( $<5 \cdot 10^{-4}$ ), W ( $<5 \cdot 10^{-4}$ ), Mo ( $<1 \cdot 10^{-4}$ ), Cu ( $<5 \cdot 10^{-5}$ ), Ni ( $<5 \cdot 10^{-5}$ ), Fe ( $<5 \cdot 10^{-5}$ ), H ( $<1 \cdot 10^{-4}$ ), O ( $\sim 0,003$ ). Образцы Gd были изготовлены в форме симметричных дисков наибольшей толщиной  $h \sim 5$  мм, имеющих диаметр  $d \sim 30$  мм. Вырезанные диски подвергали пластическому деформированию холодной прокаткой с суммарной степенью обжатия  $\varepsilon=50\%$ . Для выполнения этого этапа использовался лабораторный стан, размер валков которого составляет в диаметре  $D=200$  мм. Низкий уровень содержания примесей в поликристаллическом Gd способствовал активизации различных кристаллографических систем скольжения (для Gd первичная система скольжения

— призматическая  $\{10\bar{1}1\}\langle 11\bar{2}0\rangle$ , вторичная — базисная  $(0001)\langle 11\bar{2}0\rangle$  и двойникования (по системам  $\{11\bar{2}1\}\langle 11\bar{2}6\rangle$  и  $\{10\bar{1}2\}\langle 10\bar{1}1\rangle$ ), которые являются основными сдвиговыми механизмами пластической деформации [6]. Следствием действия указанных механизмов пластической деформации является интенсивное текстурообразование в поликристаллических образцах, что приводит к возникновению острых одно-, двухкомпонентных текстур [7], к интенсивному дроблению зерен поликристалла, фрагментации. Наличие в поликристалле областей когерентного рассеяния, для которых протяженность правильного кристаллографического строения не превышает 10 мкм, приводит к эффекту уширения дифрактометрических линий [2].

Эталонный образец поликристаллического гадолиния был изготовлен методом напилочки и просеивания полученного порошка через сито. С целью уменьшения формирования в образце преимущественных ориентировок кристаллитов, текстуры «укладки», применялся метод упаковки кристаллитов в пластиковую кювету. Возникшие в образце микронапряжения деформации, вызванные механической обработкой, снимались при отжиге в вакуумной печи (остаточное давление в камере составляло  $\sim 10^{-4}$  мм. рт. ст.). Отжиг проводился в течение часа при температуре  $t=600$  °С, после чего эталонный образец охлаждался вместе с печью. Дифрактометрические измерения эталона и деформированного поликристаллического образца Gd производились в одинаковых инструментальных условиях (равные геометрические параметры съемки, параметры коллимации рентгеновского пучка, равный температурный и мощностной режим работы рентгеновской трубки и т. д.).

В данной работе представлен анализ профиля дифракционной линии Gd, полученной при рентгеновском отражении от системы призматических плоскостей  $(10\bar{1}0)$ , при этом экспериментальный диапазон углов дифракции составлял  $26^{\circ}40' \div 29^{\circ}20'$  (Рисунок).

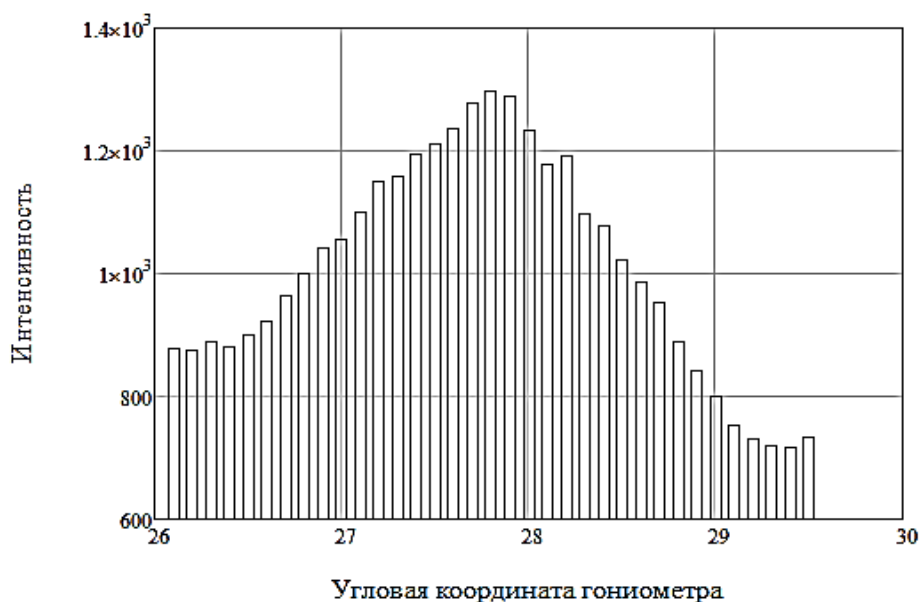


Рисунок. Профиль дифракционной линии  $(10\bar{1}0)$  гадолиния.

Экспериментальные результаты указывают на имеющуюся асимметрию профиля дифракционной линии поликристалла. Асимметрия профиля связана с особенностями распределения кристаллитов по размерам [8]. Корректное выполнение анализа такой функциональной связи сопряжено со значительными трудностями [9], и на практике

ограничиваются приближенными оценками такой взаимосвязи, основанными на различных теоретических подходах [10–11].

Ширина  $B$  дифракционной линии, полученной при отражении рентгеновских лучей от системы кристаллографических плоскостей (HKL), определяется на половине высоты дифракционного максимума  $I_{max}$  и зависит от среднего размера  $\langle D \rangle_{HKL}$  области когерентного рассеивания в направлении нормали к плоскости (HKL).

Усреднение величины  $\langle D \rangle_{HKL}$  должно производиться по достаточно большой площади  $S > 1 \text{ см}^2$  поверхности исследуемого поликристалла. С этой целью производилось вращение образца, закрепленного в обойме гониометрической приставки. Кроме дисперсности ОКР, на уширение дифракционной линии оказывает влияние микродеформация кристаллической решетки  $\langle \varepsilon \rangle = \Delta d/d_{HKL}$ , где  $\Delta d$  — среднее по значению изменение межплоскостного расстояния  $d_{HKL}$ , обусловленное наличием дефектов решетки. Если уширение пропорционально  $1/\cos\theta$ , то оно вызвано дисперсностью кристаллитов, а если уширение пропорционально  $\tan\theta$ , то причиной уширения являются дислокации и их скопления, характеризующиеся дальнедействующими полями [3].

Профиль дифракционной линии можно изучать с помощью метода гармонического анализа, который, однако, не является наиболее удобным и простым в применении. За основу анализа профиля была выбрана методика, разработанная Шерером и Селяковым [4]. Ширина каждой экспериментальной линии  $B$  представляет собой наложение двух компонент:

1) инструментальная ширина  $b$  (ширины линии эталона), величина которой зависит от геометрии съемки, расходимости пучка, размера фокуса трубки и т. д.;

2) физическое уширение  $\beta$ , которое определяется факторами несовершенства кристаллической структуры (дисперсностью, микроискажениями, дефектами упаковки и т. д.). При этом указанные компоненты не просто складываются арифметически и дают экспериментально наблюдаемый профиль дифракционной линии, а каждый элемент инструментальной линии испытывает физическое уширение (функционально описывается как свертка функций):

$$h(\theta) = \int f(\theta - \alpha)g(\alpha)d\alpha .$$

где  $h(\theta)$  — результирующая кривая распределения интенсивности дифракционной линии в зависимости от угла дифракции (линия поликристаллического образца),  $f(\theta - \alpha)$  — кривая распределения физического уширения инструментальной линии (линии эталона),  $g(\alpha)$  — интенсивность инструментальной линии (профиль дифракционной линии эталона).

Интегральная ширина  $B$  дифракционной линии определяется по формуле:

$$B = \frac{\int_{\theta_m - \Delta\theta}^{\theta_m + \Delta\theta} h(\theta)d\theta}{I_m \cdot 2\Delta\theta} ,$$

где  $h(\theta)$  — функция распределения интенсивности дифракционной линии образца,  $\Delta\theta$  — угловая граница профиля дифракционной линии,  $I_m$  — максимум пика интенсивности.

$B$ ,  $b$  являются экспериментальными величинами, а физическое уширение определяют из формул связи этих трех величин. При расчетах физического уширения для описания профилей линий используют аппроксимирующие функции Гаусса, Коши, Фойгта и т. д. В этой работе использована функция Коши, при этом физическое уширение составляет  $\beta = B - b$ . При расчетах также учитывалась немонахроматичность рентгеновского излучения, состоящего из двух компонент  $K_{\alpha 1}$  и  $K_{\alpha 2}$ , для чего используются специальные поправочные коэффициенты. Средний размер ОКР  $\langle D \rangle_{HKL}$  в данной работе оценивали по формуле Шерера–Селякова [4]:

$$\langle D \rangle_{HKL} = \frac{k \cdot \lambda}{\beta \cdot \cos \theta},$$

где  $\lambda$  — длина волны рентгеновского излучения ( $\lambda_{CuK\alpha} = 1,542 \text{ \AA}$ ),  $\beta$  — физическое уширение (рад),  $\theta$  — угол отражения рентгеновских лучей,  $k$  — коэффициент, зависящий от формы ОКР (чаще всего равный 1).

По результатам эксперимента определялись интегральные площади под кривыми интенсивности для поликристаллического образца и эталона Gd, а также величины максимумов интенсивности и угловые границы профиля дифракционной линии. Основные результаты, полученные при анализе уширения дифракционной линии гадолиния, представлены в Таблице.

Таблица.

{HKIL}	$2\theta$	$\Delta\theta$	$\beta, 10^{-3}$ рад	$\langle D \rangle_{HKL}, \text{ нм}$
(10 $\bar{1}$ 0)	27°51'	2°40'	1,182	134

Таким образом, полученные в данной работе результаты дифрактометрического исследования областей когерентного рассеивания в поликристаллическом гадолинии могут служить основой для анализа физико–механических свойств образцов металла, изучения динамики структурных изменений в ходе термомеханической обработки, использовать для разработки технологических схем получения новых материалов с учетом их структурных особенностей.

#### Список литературы:

1. Золоторевский Н. Ю., Рыбин В. В. Фрагментация и текстурообразование при деформации металлических материалов. СПб.: Изд-во Политехн. ун-та, 2014. 208 с.
2. Ягодкин Ю. Д., Добаткин С. В. Применение электронной микроскопии и рентгеноструктурного анализа для определения размеров структурных элементов в нанокристаллических материалах // Заводская лаборатория. Диагностика материалов. 2007. Т. 73. №1. С. 38-49.
3. Гусев А. И. Наноматериалы, наноструктуры, нанотехнологии. М.: Наука-Физматлит, 2007. 416 с.
4. Уманский Я. С., Скаков Ю. А., Иванов А. Н., Расторгуев Л. Н. Кристаллография, рентгенография и электронная микроскопия. М.: Металлургия, 1982. 632 с.
5. Gschneidner K. A. Physical properties of the rare earth metals // Bulletin of Alloy Phase Diagrams. 1990. Т. 11. №3. С. 216-224.
6. Степаненко А. В. Текстурообразование при осадке и рекристаллизационном отжиге гадолиния // Успехи современной науки и образования. 2016. Т. 3. №6. С. 85-87.

7. Адамеску Р. А., Гребенкин С. В., Степаненко А. В., Чуприков Г. Е. Текстуорообразование при осадке сплавов системы Tb-Gd // Физика металлов и металловедение. 1993. Т. 76. №1. С. 139-143.

8. Беленков Е. А., Яковлев Д. В. Особенности анализа формы профилей рентгеновских дифракционных линий углеродных материалов. Часть 2. Связь формы профилей и распределения кристаллов по размерам // Известия Челябинского научного центра УрО РАН. 2001. №2 (11). С. 71-80.

9. Трусов П. В., Швейкин А. И., Волегов П. С., Кондратьев Н. С., Янц А. Ю., Макаревич Е. С., Зубко И. Ю., Шарифуллина Э. Р. Математическое моделирование процессов глубокого пластического деформирования с описанием эволюции микроструктуры // Вестник Пермского научного центра. 2013. №3. С. 121-132.

10. Шаренкова Н. В., Каминский В. В., Петров С. Н. Размеры областей когерентного рассеяния рентгеновского излучения в тонких пленках SmS и их визуализация // Журнал технической физики. 2001. Т. 81. №9. С. 144-146.

11. Тельканов М. А., Волегов П. С. Описание ротаций кристаллических решеток и фрагментации зерен при интенсивных неупругих деформациях поликристаллов // Вестник Тамбовского университета. Серия Естественные и технические науки. Физика. 2016. Т. 21. №3. С. 1338-1341.

#### References:

1. Zolotarevskii, N. Yu., & Rybin, V. V. (2014). Fragmentatsiya i teksturoobrazovanie pri deformatsii metallicheskih materialov. St. Petersburg, Izd-vo Politekhn. un-ta, 208. (in Russian).

2. Yagodkin, Yu. D., & Dobatkin, S. V. (2007). Application of electron microscopy and X-ray diffraction analysis for determination of nano-crystalmaterials structure elements sizes (Review). *Industrial Laboratory*, 73(1), 38-49. (in Russian).

3. Gusev, A. I. (2007). Nanomaterialy, nanostrukturny, nanotekhnologii. Moscow, Nauka-Fizmatlit, 416. (in Russian).

4. Umanskii, Ya. S., Skakov, Yu. A., Ivanov, A. N., & Rastorguev, L. N. (1982). Kristallografiya, rentgenografiya i elektronnaya mikroskopiya. Moscow, Metallurgiya, 632. (in Russian).

5. Gschneidner, K. A. (1990). Physical properties of the rare earth metals. *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*, 11(3), 216-224. (in Russian).

6. Stepanenko, A. V. (2016). Teksturoobrazovanie pri osadke i rekristallizatsionnom otzhige gadoliniya. *Uspekhi sovremennoi nauki i obrazovaniya*, 3(6), 85-87. (in Russian).

7. Adamesku, R. A., Grebenkin, S. V., Chuprikov, G. E., & Stepanenko, A. V. (1993). Texturing with the sediment of the Tb-Gd system alloys. *Metal Physics and Metallography*, 76(1), 139-143. (in Russian).

8. Belenkov, E. A., & Yakovlev, D. V. (2001). Peculiarities of the analysis of the form of profiles X-RAY diffraction lines for carbon materials Part II. relation of the form of profiles and distribution of crystals on the sizes. *News of the Chelyabinsk Scientific Center*, (2), 38-45. (in Russian)

9. Trusov, P. V., Shveykin, A. I., Volegov, P. S., Kondratyev, N. S., Yanz, A. Yu., Makarevich, E. S., Zoubko, I. Yu., & Sharifullina, E. R. (2013). Mathematical modeling of the intensive plastic deformation with the description of microstructure evolution. *Bulletin of the Perm Scientific Center*, (3), 121-132. (in Russian).



10. Sharenkova, N. V., Kaminskii, V. V., & Petrov, S. N. (2001). Sizes of coherent X-ray scattering areas in thin SmS films and their visualization. *Technical Physics Journal*, 81(9), 144-146. (in Russian).

11. Telkanov, M. A., & Volegov, P. S. (2016). Description of crystal lattice rotations and grain fragmentation under intense inelastic deformations of polycrystals. *Bulletin of the Tambov University. Series Natural and Technical Sciences*, 21(3), 1338-1341. (in Russian).

*Работа поступила  
в редакцию 17.12.2018 г.*

*Принята к публикации  
21.12.2018 г.*

---

*Ссылка для цитирования:*

Степаненко А. В. Применение дифракционного метода для определения размеров структурных элементов в поликристаллическом гадолинии // Бюллетень науки и практики. 2019. Т. 5. №1. С. 11-17. Режим доступа: <http://www.bulletennauki.com/38-44> (дата обращения 15.01.2019).

*Cite as (APA):*

Stepanenko, A. (2019). Application of diffraction method for determining the dimensions of structural elements in polycrystalline gadoline. *Bulletin of Science and Practice*, 5(1), 11-17. (in Russian).