

# Háromdimenziós Röntgen vonalprofil analízis

doktori értekezés tézisei

Zilahi Gyula

2017

**Témavezetők:**            **dr. Ungár Tamás**  
   **dr. Ribárik Gábor**



Eötvös Loránd Tudományegyetem

Természettudományi Kar

Fizika Doktori Iskola

Anyagtudomány és szilárdtestfizika program

# 1 Bevezetés

A kinematikus szóráselmélet keretei között egy hibamentes nagy méretű kristály diffrakciós csúcsa  $\delta$  függvényhez hasonló: a szélessége nulla, az integrált intenzitása véges, ahogyan azt Warren [1969] a pordiffrakciós szórt teljesítmény elméletében megmutatja a 13.19 – 13.22 egyenletekben. Amikor (i) a kristály kisebb, mint körülbelül  $1\ \mu\text{m}$ , vagy amikor (ii) diszlokációkat, (iii) síkhibákat, (iv) kémiai inhomogenitásokat (v) rácsdeformációkat vagy más típusú rácshibákat tartalmaz, a diffrakciós csúcsok kiszélesednek. A  $g$ , diffrakciós vektor által megadott Bragg pozíció körüli szórt intenzitás háromdimenziós kiterjedésű a reciprok térben. A hagyományos diffrakciós módszerek az intenzitás eloszlásnak vagy csak a sugár irányú, vagy pedig az érintő irányú komponensét mérik, amelyeket a szakirodalom vonalprofilnak, illetve „rocking-curve”-nek nevez. Az előbbire példa a pordiffrakció és az egykristály vonalprofil analízis, az utóbbira pedig a Laue diffrakció, az egykristály rocking-curve mérés és a textúra mérés. Az utóbbi évtizedekben azonban a nagy fényességű szinkrotron sugárforrások lehetővé tették a reciprok tér háromdimenziós letapogatását célzó eljárások fejlesztését [Chung & Ice 1999; Lauridsen et al. 2001; Jakobsen et al. 2006; Levine et al. 2006]. Bár a technikai feltételek ma már adottak a diffrakciós profilok háromdimenziós

méréséhez, az alkalmazott mikroszerkezeti modellek még mindig vagy csak a sugár irányú [Warren & Averbach 1952; Williamson & Hall 1953; Wilkens 1970; Groma 1998], vagy pedig az érintő irányú [Wilkens et al. 1987; Barabash & Klimanek 1999; Barabash et al. 2003] komponensekkel foglalkoznak.

A disszertáció egyik célkitűzése egy egységes tárgyalási mód bevezetése, amely lefedi mind a vonalprofil, mind a „rocking-curve” modelleket, ezáltal segíti a valóban háromdimenziós csúcsprofil modellek kifejlesztését. A másik fő cél egy új, háromdimenziós Röntgen diffrakciós eljárás fejlesztésében való részvétel és aktív hozzájárulás, ami tömbi polikristályos minták szemcsénkénti diszlokációsűrűségét, és ennek különböző diszlokációtípusok közötti megoszlását teszi mérhetővé. A disszertáció további célja a kidolgozott eljárás alkalmazásával értékes, korábban kísérletileg nem elérhető információk gyűjtése képlékenyen alakított polikristályos anyagok diszlokációszerkezetéről, és a szemcsékben működő csúszási rendszerekről.

## **2 Alkalmazott módszerek**

A háromdimenziós profilok matematikai leírásához elméleti tanulmányokat folytattam. Áttekintettem a már létező diffrakción alapuló kísérleti módszereket és a vonalprofil, valamint a rocking-curve kapcsolódó fizikai modelljeit. Egy új, a nem lokális deformáció tenzor

forogtatás és alakítás részre való poláris felbontásán alapuló matematikai leírást dolgoztam ki, aminek keretében mind a korábbi lokális elfordulásokon alapuló rocking-curve, mind pedig az átlagos négyzetes deformáción alapuló vonalprofil modellek tárgyalhatók.

A diffrakciós mérések az USA Illinois államában lévő Argonne National Laboratory Advanced Photon Source (APS) szinkrotronjának 1-ID nyálábjánál történtek. A kiértékelésnél a diffrakciós csúcsok azonosításához és a szemcsék indexeléséhez a FABLE szoftvercsomag [Sørensen Henning et al. 2011] elemeit használtam fel. A vonalprofilok integrálásához saját szoftvert fejlesztettem. A skálázatlan mért diszlokáció kontrasztfaktorokat, azaz a diffrakciós vektor irányától függő csúcskiszéledést a CMWP [Ribárik et al. 2001; 2004] illesztő szoftverrel határoztam meg. Tanulmányoztam diszlokációs vonalkiszéledési kontraszt faktorok irányfüggő tagját, hogy meghatározzam egy tetszőleges diszlokáció konfiguráció irányfüggő vonalkiszéledési kontrasztját leíró szabad paramétereket. Egy Monte-Carlo típusú algoritmust fejlesztettem a szemcsék diszlokáció konfigurációjának irányfüggő vonalkiszéledés alapján való meghatározására. Pólusábrákat, inverz pólusábrákat és Schmid-faktor analízist alkalmaztam a mért diszlokációtípusok orientációfüggésének vizsgálatára. Háromdimenziós misorientáció eloszlást számoltam az ikresedés azonosításához magnéziumban.

### 3 Eredmények

I. Egységes matematikai leírást dolgoztam ki a vonalprofil és a rocking-curve jellemzésére, ami a nem lokális deformáció tenzor forgatás és alakítás részre való poláris felbontásán alapul. [Zilahi et al. 2015] Kísérleti példákon bemutattam, hogy a forgatás rész nem feltétlenül tekinthető infinitezimálisnak. A deformáció tenzor infinitezimális felbontása szimmetrikus és antiszimmetrikus részre nem felel meg a szubszemcsék nem infinitezimális elfordulásának képlékenyen alakított kristályokban. Megmutattam, hogy mind a forgatás, mind az alakítás rész nyírás komponense okoz rocking-curve kiszélesedést, azonban képlékenyen alakított kristályokban az előbbi adja a legfőbb járulékot.

II. Polikristályokban szemcsénkénti diszlokációszerkezet meghatározást lehetővé tevő Röntgendiffrakciós eljárást fejlesztettem [Ungár et al. 2014]. A módszerrel megkülönböztethetők a különböző Burgers-vektor típusokhoz, valamint diszlokáció karakterekhez (él vagy csavar) tartozó részleges diszlokációsúréségek, ugyanis az irányfüggő vonalkiszélesedés közvetlenül a Burgers-vektor és a vonalvektor alapján van kiszámolva. Az egyedi szemcse alapú megközelítés mentes a korábban publikált, pordiffrakciós mérésekkel járó előfeltevésektől. Ami korábban csak transzmissziós elektronmikroszkópban volt látható, most Röntgendiffrakcióval is megmérhető. Ez kü-

lönösen hasznos lehet a plasztikusan anizotrop anyagok deformációs mechanizmusainak vizsgálatánál, mint amilyenek a CsCl szerkezetű rendezett ötvözetek, vagy a nem köbös fémek.

III. Megmutattam, hogy tetszőleges diszlokáció konfiguráció irányfüggő vonalszélesedési kontrasztja 15 paraméterrel írható le. Ezek a  $\gamma_q^Y$  iránykoszinuszok 15 független kombinációjának együtthathatói, ahol a  $\gamma_q^Y$  iránykoszinuszok az  $Y$ , kristályrácshoz rögzített ortonormális koordináta-rendszerben vannak megadva [Zilahi et al. 2017a]. Ennek egy fontos következménye, hogy ha 15-nél több különböző diszlokációtípus van jelen egy szemcsében, akkor nem lehet egyértelműen meghatározni a diszlokáció konfigurációt az irányfüggő vonalszélesedési kontraszt alapján.

IV. Monte-Carlo típusú illesztő algoritmust fejlesztettem a mért diszlokációs vonalszélesedési kontrasztot legjobban visszaadó diszlokáció konfiguráció megtalálására [Ungár et al. 2014]. Ez alapvetően egy lineáris egyenletrendszer megoldását jelenti, azonban az alábbi extra megszorító feltételeket is kihasználja: (i) A megoldás nem lehet negatív egyetlen diszlokációtípusra sem és (ii) bár az összes lehetséges diszlokációtípus száma nagy, általában csak néhány csúszási rendszer aktív egy szemcsében, ezért csak néhányféle diszlokációtípus keletkezik és marad a szemcsében a képlékeny deformáció után. Az algoritmust egy szimulált adatsoron ellenőriztem. Nagyjából az

esetek 90 százalékában megfelelő pontossággal visszaadta a szimulált diszlokáció típusokat, amikor minden szimulált szemcse 5 különböző típusú diszlokációt tartalmazott, és nagyjából 3–5 százaléknyi zajt adtam a szimulált kontrasztfaktorokhoz a mérési bizonytalanság imitálásaként.

V. Az új mérési eljárást képlékenyen alakított polikristályos CoTi és CoZr B2 rácsszerkezetű ötvözetekre alkalmaztam [Ungár et al. 2014]. Több mint 150 szemcse diszlokációszerkezetét értékeltem ki a két mintában. Azt a következtetést vontam le az eredményekből, hogy a CoTi és CoZr ötvözetek képlékeny deformációja az ún. lágy ( $\mathbf{b} = \langle 100 \rangle$ ) és kemény ( $\mathbf{b} = \langle 110 \rangle$  és  $\mathbf{b} = \langle 111 \rangle$ ) módusok együttes aktivációjával megy végbe, ami összhangban van a korábbi, kis számú szemcsén végzett TEM vizsgálatokkal. Az eredmény kielégítő magyarázatot nyújt ezen két CsCl szerkezetű ötvözet közepes alakíthatóságára. A képlékeny alakíthatóság tapasztalt mértékét korábban anomálisnak tekintették a deformációs mechanizmusok egykristály mérésekre alapozott vizsgálatai nyomán.

VI. Az eljárást képlékenyen alakított polikristályos Mg AZ31 ötvözetekre is alkalmaztam [Zilahi et al. 2017b]. A minták textúráit a mért szemcse orientációk és térfogati hányadok alapján tanulmányoztam. Az ikerszemcse kapcsolatokat a szemcsék háromdimenziós misorientáció eloszlása alapján határoztam meg. A csúszási rendszer

típusokat az inverz pólusábrán ábrázolt szemcse orientációk, valamint az ikerszemcse viszonyok függvényében vizsgáltam. Lényeges eltéréseket tapasztaltam az anya- és az ikerszemcse diszlokációs szerkezetében. Az ND-C minta ikerszemcséi között a teljes diszlokációs sűrűség kisebb a pólusábra központi szemcséiben, amelyeknek a c tengelye közelebb esik a hengerelt lemez normális irányához, mint az ikerpárjuké. A prizmatikus diszlokációk sűrűsége a központi, míg az  $\langle a \rangle$  és a  $\langle c+a \rangle/A$  típusú piramidális diszlokációké a szélső szemcsékben nagyobb. Hasonló összefüggések találhatók az RD-C mintában is, bár az azonosított ikerpárok száma jóval kisebb.

#### **4 Az értekezéshez kapcsolódó saját publikációk**

**Zilahi, G.; Ungár, T. and Tichy, G. (2015).** *A common theory of line broadening and rocking curves*, Journal of Applied Crystallography 48 : 418-430.

**Ungár, T.; Ribárik, G.; Zilahi, G.; Mulay, R.; Lienert, U.; Balogh, L. and Agnew, S. (2014).** *Slip systems and dislocation densities in individual grains of polycrystalline aggregates of plastically deformed CoTi and CoZr alloys*, Acta Materialia 71 : 264-282.



**Zilahi, G.; Ribárik, G. and Ungár, T. (2017a).** *Direction dependence of dislocation broadening contrast*, in preparation.

**Zilahi, G.; Ungar, T.; Ribárik, G.; Toth, L. S.; Balogh, L.; Wu, W.; Lienert, U. and Agnew, S. (2017b).** *Slip systems and dislocation densities in individual grains and parent-twin pairs of polycrystalline Mg AZ31 alloys*, in preparation.

## **5 Irodalomjegyzék**

**Barabash, R. I.; Ice, G. E. and Walker, F. J. (2003).** *Quantitative microdiffraction from deformed crystals with unpaired dislocations and dislocation walls*, Journal of Applied Physics 93 : 1457-1464.

**Barabash, R. I. and Klimanek, P. (1999).** *X-ray scattering by crystals with local lattice rotation fields*, Journal of Applied Crystallography 32 : 1050-1059.

**Chung, J.-S. and Ice, G. E. (1999).** *Automated indexing for texture and strain measurement with broad-bandpass x-ray microbeams*, Journal of Applied Physics 86 : 5249-5255.

**Groma, I. (1998).** *X-ray line broadening due to an inhomogeneous dislocation distribution*, Physical Review B 57 : 7535-7542.

**Jakobsen, B.; Poulsen, H. F.; Lienert, U.; Almer, J.; Shastri, S.**

**D.; Sørensen, H. O.; Gundlach, C. and Pantleon, W. (2006).** *Formation and Subdivision of Deformation Structures During Plastic Deformation*, Science 312 : 889-892.

**Lauridsen, E. M.; Schmidt, S.; Suter, R. M. and Poulsen, H. F. (2001).** *Tracking: a method for structural characterization of grains in powders or polycrystals*, Journal of Applied Crystallography 34 : 744-750.

**Levine, L. E.; Larson, B. C.; Yang, W.; Kassner, M. E.; Tischler, J. Z.; Delos-Reyes, M. A.; Fields, R. J. and Liu, W. (2006).** *X-ray microbeam measurements of individual dislocation cell elastic strains in deformed single-crystal copper*, Nat Mater 5 : 619-622.

**Ribárik, G.; Gubicza, J. and Ungár, T. (2004).** *Correlation between strength and microstructure of ball-milled Al–Mg alloys determined by X-ray diffraction*, Materials Science and Engineering: A 387–389 : 343-347.

**Ribárik, G.; Ungár, T. and Gubicza, J. (2001).** *MWP-fit: a program for multiple whole-profile fitting of diffraction peak profiles by *ab initio* theoretical functions*, Journal of Applied Crystallography 34 : 669-676.

**Sørensen Henning, O.; Søren, S.; Wright Jonathan, P.; Vaughan Gavin B., M.; Simone, T.; Garman Elspeth, F.; Jette, O.; Jav, D.;**

**Paithankar Karthik, S.; Carsten, G. and Poulsen Henning, F. (2011).** *Multigrain crystallography*, Zeitschrift für Kristallographie Crystalline Materials 227 : 63.

**Warren, B. E. (1969).** *X-ray diffraction*, Addison-Wesley Pub. Co.

**Warren, B. E. and Averbach, B. L. (1952).** *The Separation of Cold-Work Distortion and Particle Size Broadening in X-Ray Patterns*, Journal of Applied Physics 23 : 497-497.

**Wilkins, M. (1970).** *Theoretical Aspects of Kinematical Diffraction Profiles from Crystals Containing Dislocation Distributions*. pp. 1195-1221 In: Simmons, A.; DeWitt, R. & Bullough, R. (Ed.), *Fundamental Aspects of Dislocation Theory* Vol. II., NBS (U.S.) Special Publication No. 317., U.S. National Bureau of Standards, Washington , DC.

**Wilkins, M.; Ungár, T. and Mughrabi, H. (1987).** *X-ray rocking-curve broadening of tensile-deformed [001]-orientated copper single crystals*, physica status solidi (a) 104 : 157-170.

**Williamson, G. K. and Hall, W. H. (1953).** *X-ray line broadening from fided aluminium and wolfram*, Acta Metallurgica 1 : 22-31.