

用正电子湮没技术研究形变铁的恢复

曹 玗 王蕴玉 熊兴民

(中国科学院高能物理研究所)

熊良钺 姜 健

(中国科学院金属研究所)

1981年1月30日收到

提 要

本文介绍应用正电子湮没寿命和多普勒加宽方法研究60%形变铁等时退火各阶段中缺陷的恢复行为。实验结果说明正电子湮没平均寿命 $\bar{\tau}$ 及多普勒加宽的 S 参数都是退火温度的函数。完整晶体中湮没寿命 $\tau_f = 111 \pm 1\text{ps}$ 。缺陷中湮没寿命 $\tau_d = 162 \pm 1\text{ps}$ 。本文还根据捕获模型计算了正电子的捕获速率及 τ_1 ，结果证明与理论预期的完全一致。经计算得出捕获正电子的相对缺陷浓度的范围为 10^{-7} — 10^{-4} 数量级。

一、引 言

近年来，正电子湮没技术已被广泛地应用于金属缺陷的研究。它对晶格中的空位、空位聚集体、位错以及位错环等各种空位型的缺陷十分灵敏。根据测定正电子的湮没寿命或测定角关联曲线以及多普勒加宽的线形参数 S 的变化可以判断晶格的完整性和缺陷的类型。自1969年 Bergersen 和 Stott 等^[1]提出正电子在金属缺陷中的捕获模型以后，该技术已从定性阶段提高到定量阶段。

正电子所处环境的电子结构及缺陷数目决定正电子的湮没特性。在晶格缺陷中离子电荷发生了变化。一般在金属中由于正离子位移到晶格表面而使缺陷呈负电荷区，正电子受它吸引而选择性地缺陷中湮没。因此，观测正电子的湮没特性是研究晶格缺陷的一种有力的手段。该技术独到之处在于它可以探测用透射电子显微镜观察不到的几个 \AA 的空位及三维聚集体，并能区别缺陷的类型。另一优点是在测试中不破坏样品，以及在广泛的温度范围内观测动力学过程。

本工作根据测定正电子湮没寿命及多普勒加宽谱的 S 参数研究了纯度为99.98%，下压率为60%的塑性形变铁在等时退火后缺陷的恢复行为。并与捕获模型预期的结果相比较。

二、实验方法

1. 样品 实验所用纯铁样品由沈阳金属研究所加工制备。纯度为99.98%，含碳量

为 0.015%。首先将样品冷加工到 1 mm 厚, 在 850°C 下真空退火 1 h, 缓冷至室温, 再冷轧至 0.4 mm (下压率为 60%); 最后, 用线切割方法切成 $15 \times 20 \text{ mm}^2$ 的长方片。这些样品分别在 100, 200, ..., 800°C 等八个不同温度下做 1 h 的等时退火。另取一未经形变在 850°C 退火 1 h 的样品作为具有完整晶格的参考样品。测量前所有样品经电解抛光。

2. 测量 用无载体的 ^{22}Na 作为正电子源。将无载体的 $^{22}\text{NaCl}$ 溶液滴在 $\sim 1 \text{ mg/cm}^2$ 的云母片上, 烘干后用另一片云母覆盖, 用铝箔作框架固定。测量时将放射源夹在两片同样的样品中。源强度约 $8 \mu\text{Ci}$ 。

正电子寿命谱仪按快慢符合方式组装, 对正电子湮没释放的 511 keV 的 γ 能峰的时间分辨 (FWHM) 为 260 ps。每次测量寿命谱的累积计数达 $\sim 1 \times 10^6$ 。

测量 511 keV 湮没能峰的多普勒加宽使用型号为 SCROPIO 3000 的 Ge(Li) 谱仪。晶体尺寸为 138 cm^3 , 对 Sr^{85} 514 keV γ 射线的能量分辨 (FWHM) 为 1.45 keV。单次测量累积计数 $\sim 9 \times 10^5$ 。

共测三批平行样品, 每批样品重复测量 3 至 5 次。测量的标准偏差列于表 1。

三、实验结果

寿命谱用最小二乘法指数拟合处理 分解出两个组份, 其中由源效应引起的是长寿命组份, 而短寿命组份是正电子在样品的完整晶格以及位错、空位、晶界等缺陷中湮没的平均寿命, 称为 $\bar{\tau}$ 。它的变化反映了形变铁中缺陷恢复的特性 是退火温度的函数

多普勒加宽谱线形参数 S 的定义为 $S = A/(B + B_2)$, 如图 1。A, B_1 , B_2 为图中所示的相应区域内的总计数。这些区域的选定是用参考样品谱与形变样品谱相比较, 使 S 参数的变化尽可能的灵敏。与平均寿命 $\bar{\tau}$ 一样, S 参数也是退火温度的函数 实验结果见表 1 和图 2(a), (b)。

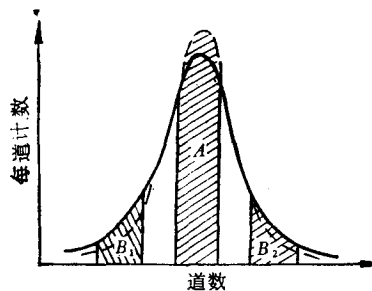


图 1 多普勒加宽示意图

表 1 经不同温度退火后的 $\bar{\tau}$ 和 S 值

退火温度(°C)	形变样品 未退火	100	200	300	400	500	600	700	800	参考样品
$\bar{\tau}$ (ps)	162 ± 1	160 ± 2	156 ± 0.2	144 ± 0.2	129 ± 0.4	124 ± 0.3	113 ± 0.2	111 ± 1.4	111 ± 0.5	111 ± 1
S	2.38	2.36	2.32	2.19	2.10	2.05	1.98	1.98	1.98	1.97

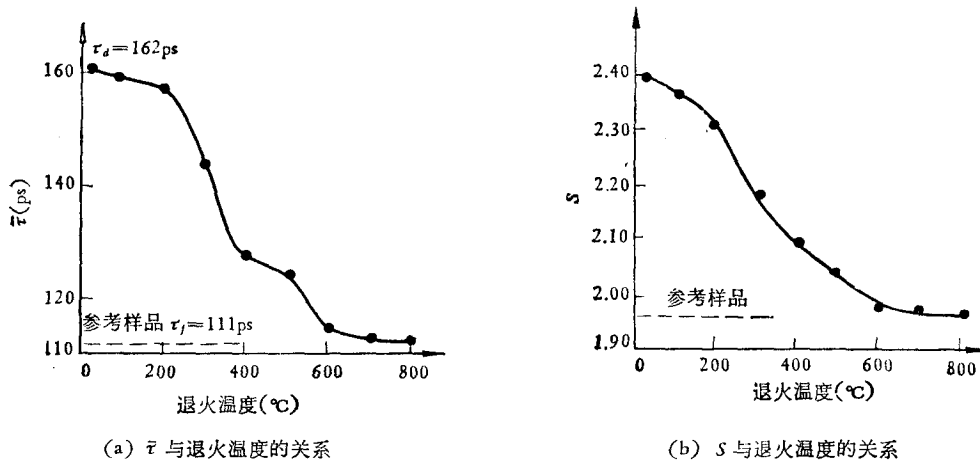


图 2

四、实验结果的分析与讨论

1. 形变铁的恢复过程

金属冷加工不但产生空位和位错,而且随着位错密度的增加,位错运动及其相互作用会产生小的空位聚集体,因此在退火过程中呈现出不同的恢复阶段.根据对图2的分析,认为形变铁的恢复过程有以下几个阶段:

(1) 起始点(25°C) 形变铁中包含着大量空位及位错. Sneed^[2] 等认为形变铁在下压率为16%时正电子被缺陷俘获已趋于饱和.所以,用60%形变铁测得的 $\bar{\tau}$ 即为正电子在缺陷中湮没的寿命 τ_d ,它的值为162ps.

(2) 100—200°C 少部分空位开始恢复.根据文献[2]碳原子在~50°C即迁移到空位而形成碳原子-空位对,消除了电荷的不平衡,起了空位恢复作用.本实验所用铁样品含碳量低,而压率60%的形变又产生大量空位.所以在此温度范围内的变化既不同于Sneed^[2]等的辐照铁在100°C时空位全部恢复,也不同于Hautojärvi^[3]等的形变铁在100°C时基本上没有恢复,而是开始少量恢复.

(3) 200—400°C 在此温度范围内,大量缺陷以较快的速度恢复;400°C时空位已基本消失.仅留下了位错.该温度范围为空位自由迁移的温度,即所谓阶段III.

(4) 400—800°C 450°C左右是位错结构的重排温度,形变铁开始再结晶过程.到700°C缺陷已全部恢复, $\bar{\tau}$ 接近于参考样品的 τ_j .

(5) 图2中虚线代表充分退火的参考样品中自由湮没寿命 $\tau_j = 111$ ps和 S 参数1.97.

S 参数的变化与 $\bar{\tau}$ 的变化趋势一致.表明了同样的恢复阶段.此处不另作讨论.

2. 捕获速率的计算

根据两态捕获模型和一旦正电子被捕获,它从空位中逃逸的机率为零的假定^[4],在任

何瞬间存在于样品中的速率方程式为

$$\begin{aligned}\frac{dn_f}{dt} &= -\lambda_f n_f - \mu_d c_d n_f, \\ \frac{dn_d}{dt} &= -\lambda_d n_d + \mu_d c_d n_f,\end{aligned}\quad (1)$$

式中 n_f , λ_f 及 n_d , λ_d 各为自由态及捕获态中正电子数目及湮没速率, μ_d 代表单位缺陷中的捕获速率, c_d 代表缺陷浓度, $\mu_d c_d$ 代表正电子的捕获速率.

利用边界条件, $t = 0$ 时, $n_f = 1$, $n_d = 0$, 求得上述解为

$$n_f(t) = e^{-\Gamma t},$$

$$n_d(t) = \frac{\mu_d c_d}{\Gamma - \lambda_d} (e^{-\lambda_d t} - e^{-\Gamma t}),$$

式中

$$\Gamma = \lambda_f + \mu_d c_d \quad (2)$$

每个组份的寿命及强度各为

$$\tau_1 = 1/\Gamma, \quad I_1 = \frac{\lambda_d - \lambda_f}{\Gamma - \lambda_d};$$

$$\tau_2 = 1/\lambda_d, \quad I_2 = \frac{\mu_d c_d}{\Gamma - \lambda_d}. \quad (3)$$

平均寿命

$$\bar{\tau} = \tau_f \frac{1 + \mu_d c_d \tau_f}{1 + \mu_d c_d \tau_f}. \quad (4)$$

以 (3) 式代入 (2) 式得

$$\Gamma = \lambda_f + (\lambda_f - \lambda_d) \frac{I_2}{I_1} \quad (5)$$

这个用捕获模型推导的关系式由 Hinode^[4] 等人用形变铜样品的退火过程从实验上证实了. 本实验也同样证实了捕获模型的真实性的.

表 2 列出应用表 1 中的 $\bar{\tau}$ 以及 τ_f , τ_d 等数据代入 (4), (2), (3) 式进行计算的结果.

表 2 根据捕获模型计算的各项参数

1	2	3	4	5	6	7	8	9
退火温度(°C)	$\bar{\tau}$ (ps)	$\mu_d c_d$ (ps ⁻¹)	Γ (ps ⁻¹)	τ_1 (ps)	I_2 (%)	I_1 (%)	I_2/I_1	c_d
100	160	0.220	0.229	4	98.7	1.3	76	2.4×10^{-4}
200	156	0.068	0.077	13	96.0	4.0	27	7.6×10^{-5}
300	144	0.017	0.026	38	85.8	14.1	6	1.9×10^{-5}
400	128	0.005	0.014	71	64.0	35.9	1.8	5.6×10^{-6}
500	124	0.003	0.012	83	51.0	48.3	1.1	3.3×10^{-6}
600	113	0.0004	0.0094	106	12.5	87.5	0.14	4.4×10^{-7}

为检验捕获模型, 现根据表 2 中数据作图分析如图 3, 4.

由图 3 可见正电子捕获速率是退火温度的函数, 随着退火温度的增高, 缺陷逐步恢复, 捕获速率逐渐下降.

由图 4 可见, I_2 随着退火温度的增加是单调下降的趋势, 这是符合捕获理论的. 本实验结果表明了理论与实验的一致性.

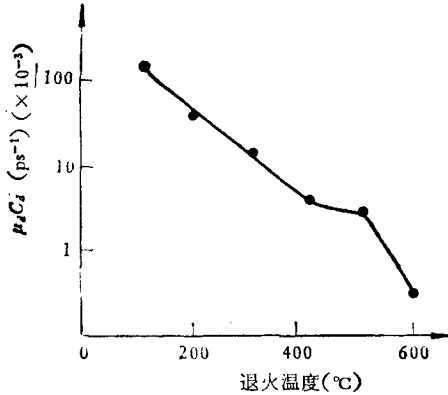
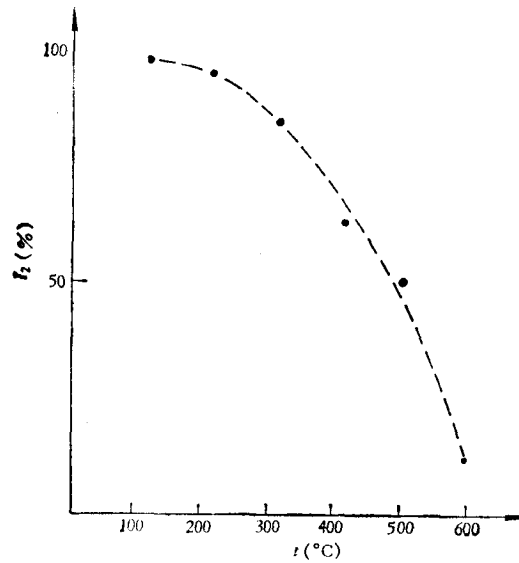


图3 捕获速率与温度的关系

图4 I_2 与退火温度 t 的关系

3. 形变铁中缺陷浓度的计算

根据文献 [5] 又知

$$\mu_d = \sigma \bar{v} \rho, \quad (6)$$

式中 σ 为正电子的捕获截面, $\sigma_{\text{Fe}} = 10^{-15} \text{ cm}^2$ [2]; ρ 为样品的原子密度, $\rho_{\text{Fe}} = 8.4 \times 10^{22} / \text{cm}^3$; \bar{v} 为正电子热速度, $\bar{v} = \left(\frac{8kT}{m\pi} \right)^{1/2} = 1.07 \times 10^7 \text{ cm/sec}$. 这里 k 为玻耳兹曼常数, $k = 1.38 \times 10^{-16} \text{ erg/deg}$; m 为正电子质量, $m = 9.1 \times 10^{-28} \text{ g}$; T 为测量时的温度, $T = 298 \text{ K}$. 以 σ_{Fe} , ρ_{Fe} 及 \bar{v} 代入 (6) 式得 $\mu_d = 899 \text{ ps}^{-1}$.

用表 2 中第 3 项捕获速率 $\mu_d C_d$, 即可求出各种温度退火后样品中的相对缺陷浓度. 计算结果见表 2 中第 9 项. 由此可见, 捕获正电子的缺陷相对浓度范围在 10^{-7} — 10^{-4} 数量级之间.

五、结 论

1. 金属铁中正电子湮没平均寿命 $\bar{\tau}$ 及 S 参数都是退火温度的函数. 完整晶格中的湮没寿命 $\tau_f = 111 \pm 1 \text{ ps}$. 缺陷中的湮没寿命 $\tau_d = 162 \pm 1 \text{ ps}$.

2. 100—200°C 时由于碳原子迁移到空位, 部分缺陷恢复. 200—400°C 为空位自由迁移温度, 大量空位恢复. 400—600°C 时位错结构重排, 为形变铁再结晶过程, 到 700°C 缺陷全部恢复. 本实验结果表明空位自由迁移温度即所谓阶段 III 为 200—400°C, 与文献 [6] 中第二类空位自由迁移温度相接近.

3. 根据捕获模型计算的结果, 证明与理论所预期的完全一致.

4. 捕获正电子的缺陷相对浓度范围为 10^{-7} — 10^{-4} 数量级.

参 考 文 献

- [1] D. C. Connors, R. N. West, *Phys. Lett. A*, **30**(1969), 24; B. Bergersen, M. J. Stott, *Sol. Stat. Comm.*, **7**(1969), 1203.
- [2] C. L. Snead, A. N. Goland, *Phys. Rev. B*, (1971), 275.
- [3] P. Hautojärvi, A. Vehanen, *Appl. Phys.*, **1**(1976), 191.
- [4] K. Hinode, S. Tanigawa, M. Doyama, *J. Phys. Soc. Jap.*, **39**(1975), 545.
- [5] R. M. J. Cotterile, K. Petersen, *J. Phys. F*, **2**(1972), 459.
- [6] S. Tanigawa, K. Hinode, N. Owada, M. Doyama. 第五次国际正电子会议文集, (1979), p. 501.

INVESTIGATION OF THE RECOVERY OF DEFORMED IRON
BY POSITRON ANNIHILATION

CAO CHUAN WANG YUN-YU XIONG XING-MIN

(Institute of High Energy Physics, Academia Sinica)

XIONG LIANG-YUE JIANG JIAN

(Institute of Metal Research, Academia Sinica)

ABSTRACT

The recovery behavior of the 60% deformed iron in various stages of isochronal annealing has been investigated by positron annihilation technique. The experimental results show that both the average life time $\bar{\tau}$ and the lineshape parameter S of the positron annihilation may be expressed as functions of annealing temperatures. Life time τ_f of the positron annihilated in the perfect lattice is found to be 111 ± 1 ps, while τ_d in the defect lattice to be 162 ± 1 ps. Trapping rates and τ_1 are calculated, these values are in good agreement with those predicted by trapping theory. It is obtained from the calculation that the range of fractional concentration of defect trapping positron is 10^{-7} — 10^{-4} .