

用正电子湮没技术研究纯镍多晶体 疲劳过程中的晶体缺陷

王淑英 季国坤

(中国科学院高能物理研究所)

侯耀永 李理

(兰州大学物理系)

1984年10月24日收到

提 要

对充分退火纯镍多晶体样品分组进行了恒应变幅拉-压疲劳试验和冷轧形变后,测量了正电子湮没参数;并选少数疲劳试样进行了电子显微镜薄膜衍射象观察.用多指数拟合方法从疲劳试样的正电子湮没寿命谱中分解出与正电子在小空位团中湮没相应的成份.这些寿命值在不同疲劳阶段分别平均为209, 255和>300ps.其相对强度的变化与小空位团浓度增加然后尺寸增大的趋势相符合.从而,本文根据正电子湮没技术提供了纯镍多晶体疲劳过程中除大量位错外空位聚集的实验证据.利用简单三态正电子捕获模型估算了上述缺陷浓度.本工作还提供了用多指数拟合方法分解复杂寿命谱和用于简单三态捕获模型的例证.

一、引 言

金属的各种强度性质包括疲劳和断裂等都与位错和点缺陷的相互作用有密切关系,疲劳或循环形变代表冷加工(单向形变)和恢复之间的复杂相互作用.因此在疲劳过程中,微观缺陷产生和变化的规律也比较复杂,除产生大量位错外还有大量空位,据信还有空位的聚集.而空隙的形成可能与材料疲劳断裂裂纹的形成机制有关.因此研究疲劳过程中缺陷的产生和变化规律有助于对疲劳损伤和断裂微观机理的认识.正电子微探针对物质中电子状态极为敏感.正电子湮没技术已成为研究材料中特别是金属和合金中微观缺陷的有力工具.其中寿命谱方法能够区分不同类型缺陷,更为有效.近些年来,已得出正电子在缺陷中湮没几率 λ 或寿命 $\tau = 1/\lambda$ 的公认的一般规律,即

$$\tau_{\text{完整晶格}} < \tau_{\text{位错}}^{1)} \lesssim \tau_{\text{单空位}} < \tau_{\text{空位团}} < \tau_{\text{空隙}}.$$

其中空位团中 τ 值随其尺寸增大而增长.也许由于疲劳过程的复杂和正电子湮没寿命谱解谱中的困难,用正电子湮没技术研究疲劳过程中缺陷的报道相对少些.在早期的工作中^[1-3]数据的分析和解释都过于简单.文献[4]根据正电子湮没辐射能量加宽线型的S

1) 一般指带割阶的位错,因实验上难以得到分立的单纯位错.

参数随循环周数增加的不饱和趋势,定性推断为不锈钢材料疲劳过程中空位的聚集.文献[5]对铝单晶进行了恒应变幅($\Delta\varepsilon = 0.17\%$)弯曲疲劳,认为从正电子湮没寿命谱中分解出的寿命成份除 $215 \pm 15\text{ps}$ 属于带割阶的位错缠结结构外, $\tau = 245 \pm 15\text{ps}$ 成份属于空位偶极子和空隙.但据该文结果, e^+ 在缺陷中的捕获远未达到饱和,这似乎有些反常.可能是谱分解中的问题,如源衬托镍片的贡献,分辨函数代表性引起的系统误差等.因此,本文对其非均匀三态捕获模型未持完全肯定的态度.

本工作着重用寿命谱方法研究纯镍金属多晶体疲劳过程中缺陷,使用多指数拟合^[6]方法分解寿命谱.最后根据简单三态捕获模型估算了缺陷浓度.

二、实 验

将纯度为 99.98% 的多晶镍金属轧制成薄板,加工为 $5 \times 30 \times 2\text{mm}$ 的试样.经表面清洗和抛光后,在 10^{-4}Torr 真空中于 850°C 退火 30min,缓冷至室温.取一组试样进行 5—4500 周恒应变幅($\Delta\varepsilon = 0.39\%$)拉-压疲劳试验,频率为 15 周/min.取另一组试样冷轧至不同形变量($\varepsilon\% = 3.6—30.9\%$).将未经加工的充分退火样品作为具有完整晶格的参考样品.用以 Mylar 膜为衬托的 $\sim 10\ \mu\text{Ci}$ Na-22 作为正电子源.寿命谱仪的时间分辨为 240ps,测量温度为 $22—25^\circ\text{C}$.选取疲劳周数 $N = 5, 20, 1000$ 三个试样进行透射电子显微镜观察.

三、实验结果与讨论

1. 从一定疲劳周数后记录的滞后回线上取拉伸和压缩半周应力峰值的平均值 σ_p 绘

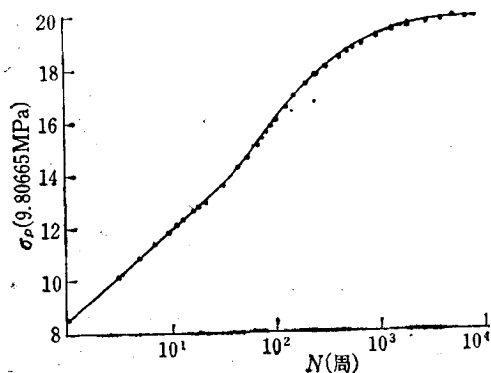


图 1 多晶镍的室温循环形变曲线

制了 $\sigma_p - \log N$ 即循环形变曲线,如图 1 所示.由图 1 可见,随疲劳周数 N 的增加,材料发生范性形变,呈现出明显的加工硬化阶段,并呈现出不同的硬化速率.在 $N \sim (50—200)$ 周范围内,硬化速率比 $N \sim 50$ 周以下高 $\sim 30\%$.说明缺陷的组态可能有变化.在 N 大约 > 200 周后,硬化渐趋饱和;此阶段应与疲劳裂纹的形成与扩张相应.电子显微镜观察结果(图 2)表明, $N = 5$ 周时位错密度较小, $N = 20$ 周时已形成密集的位错簇, $N = 1000$ 周时可见典型的位错胞状结

构.但未发现空位和空位团.

2. 疲劳试样中 e^+ 湮没 S 参数随 N 的变化以及压缩形变试样中 S 参数随 $\varepsilon\%$ 的变化示于图 3.图形表明,对于后一种试样, S 参数值随形变量迅速趋于饱和;但对于疲劳试样,饱和趋势缓慢,与文献[5]结果类似.这表明疲劳过程中缺陷变化规律更复杂些,并

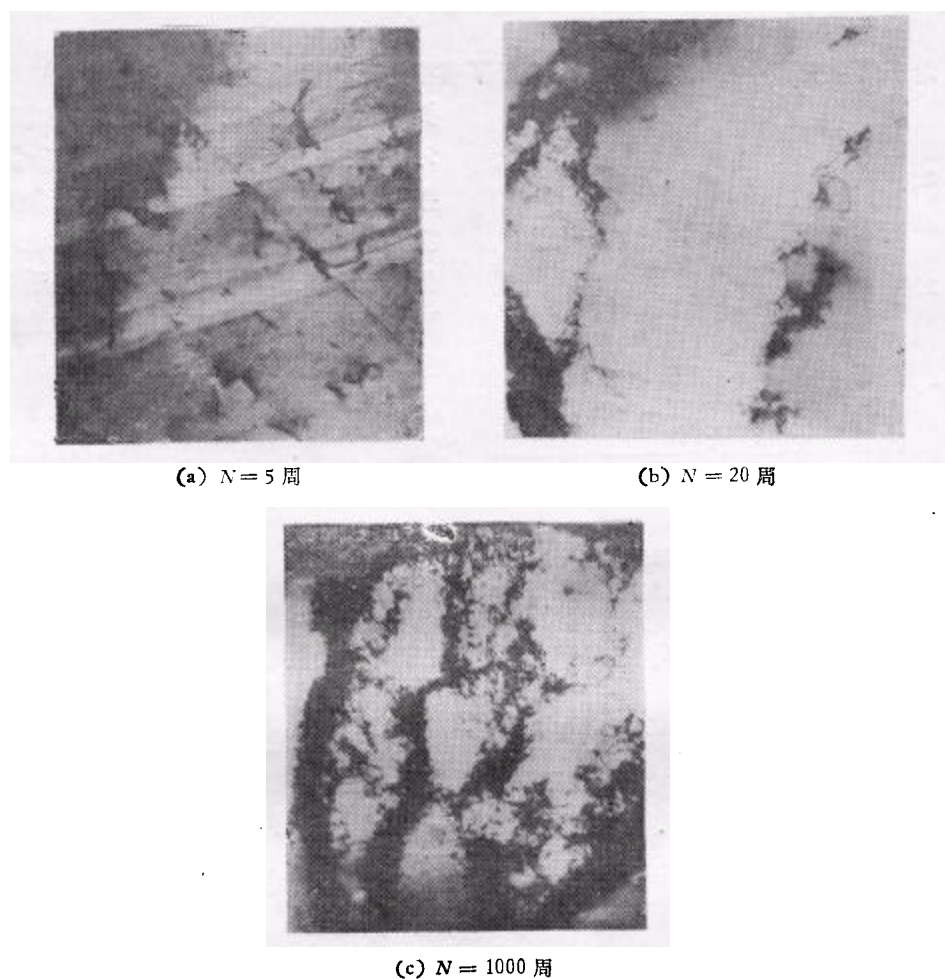


图2 多晶镍疲劳试样的电子显微镜薄膜衍射图

可能与空位的聚集有关。

3. 本工作比较细致地分解了正电子湮没寿命谱, 并从疲劳镍样寿命谱中得出有趣的结果。

表1中列出了充分退火参考镍试样中 e^+ 湮没寿命谱的分析结果。其中 τ_1^0 被指定为正电子在金属镍完整晶格中的自由湮没寿命, 其数值与文献[7]和[8]的结果在实验误差范围内一致。 τ_2^0 和 τ_3^0 归结为正电子在 e^+ 源装置和样品表面中的湮没成份, 均作为固

表1 参考镍样的 e^+ 寿命谱分析结果*

寿命 (ps)			相对强度 (%)			拟合优度 χ^2
τ_1^0	τ_2^0	τ_3^0	I_1^0	I_2^0	I_3^0	
104 ± 4	340 ± 17	1560 ± 70	88.4 ± 1.0	9.9 ± 1.0	1.6 ± 0.2	1.2 ± 0.4

* 表列结果为七条谱的测量平均值, 偏差表示对平均值的最大偏差。二组份拟合 χ^2 值显著大, 四组份拟合发散。

定本底对待。

对压缩形变和疲劳试样的寿命谱进行了直接的无约束三组份拟合(以下简称 A 法、有关数值加脚注 A)。结果见表 2 和图 4, 图 5。其主要特点如下: τ_{3A} , I_{3A} 与 τ_3^0 , I_3^0 很接近(故未列出); 对于压缩形变和疲劳试样, 其 τ_{1A} 的数值均随加工量的增大趋于饱和值 $168 \pm 7\text{ps}$, 可归结为正电子在带割阶的位错中的寿命, 但在后者中的饱和趋势慢, 与 S 参数变化趋势类似; 最引人注意的是在两组样品中 τ_{2A} 的变化趋势不同, 如图 5 所示。在疲劳试样中 τ_{2A} 在开始阶段随 N 值增大有明显的下降, 最后增加到接近 τ_2^0 的数值。但这时 I_{2A} 仍比 I_2^0 高约 5%。据此, 如果设想在疲劳过程中有一个开始 $\sim 200\text{ps}$ 然后增大到 300 多 ps 的寿命成份产生, 则可以合理解释上述结果。因为在三组份分析中必然导致相邻寿命组份的混合。

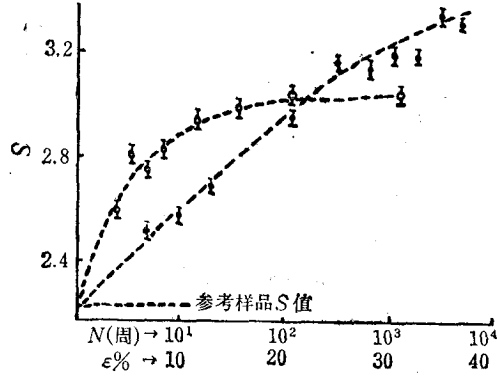


图 3 e^+ 湮没 S 参数的变化¹⁾
□ 为冷轧形变; ○ 为疲劳

为此, 进行了扣除作为本底成份的 τ_2^0 , I_2^0 以后的三组份拟合, 以便暴露设想中的寿命成份并了解其在疲劳过程中的变化规律(以下简称 B 法, 有关数值加脚注 B)。B 法的分析结果见表 2 和图 4 至图 6。如所预料, 除 τ_{3B} 与 τ_3^0 一致外, τ_{1B} 随 N 的增加趋于饱和, 其平均值 $169 \pm 7\text{ps}$ 与 τ_{1A} 一致。而 τ_{2B} 与 I_{2B} 呈现出颇有趣的变化。在 $N = 5-50$ 周内,

表 2 疲劳镍样 e^+ 寿命谱分析结果*

N (周)	A 法			B 法		
	τ_{1A} $\pm 4\text{ps}$	τ_{2A} $\pm 17\text{ps}$	I_{2A} $\pm 1-2\%$	τ_{1B} $\pm 4\text{ps}$	τ_{2B} $\pm 17\text{ps}$	I_{2B} $\pm 1-2\%$
5	114	297	20	105	217	19
10	124	286	25	111	201	33
20	134	283	29	116	210	38
50	144	288	30	122	206	48
120	164	319	20	154	245	23
300	168	319	19	167	250	13
1000	162	304	22	165	259	13
1750	172	320	18	170	267	12
3000	172	338	14	168	349	7
4500	170	322	17	175	338	5

- * 1. τ_{3A} 与 τ_{3B} : $1470-1700\text{ps}$; I_{3A} 与 I_{3B} : $\sim 1.8\%$.
2. 每组数据由 2-3 条谱线分析平均值。偏差表示对平均值的最大偏差。
3. τ_{1A} 与 τ_{1B} 饱和值的平均 168ps 取自 $N = 300-4500$ 的平均值。

1) 图 3 至图 6 中实验点之间联线均代表趋势。

τ_{2B} 的平均值为 209 ± 19 ps, 其相对强度 I_{2B} 逐渐增至峰值; 在 $N = 120 - 1750$ 周内 τ_{2B} 明显增长, 若取平均则为 255 ps, I_{2B} 则逐渐下降, 当 $N > 3000$ 周后 $\tau_{2B} > 300$ ps, 与 τ_2^0 接近, 其相对强度 $\sim 5\%$. 我们将 τ_{2B} 归结为 e^+ 在小空位团中湮没寿命. 根据与文献[9]理论计算值的比较, 可将 209 ps 与包含 2—3 个单空位的空位团联系起来. 与此类似, 可将 255 ps 以及 > 300 ps 分别与包含 3—4 个和 ≥ 6 个单空位的空位团联系起来.

4. 综合上列各图、表的结果可以推知, 在多晶镍疲劳硬化和趋于硬化饱和的过程中, 不但有带割阶的位错浓度的迅速增加, 并形成缠结结构和胞状结构, 而且有大量空位产生和聚集现象. 空位聚集过程在疲劳早期已开始. 空位团尺寸随循环周数 N 的增加继续增大. 在趋向疲劳断裂的过程中, 其中所包含的单空位数目至少在六个以上. 因而呈现出图 3 至图 6 所示的正电子湮没参数与 N 的复杂函数关系. 以下将用简单三态正电子捕

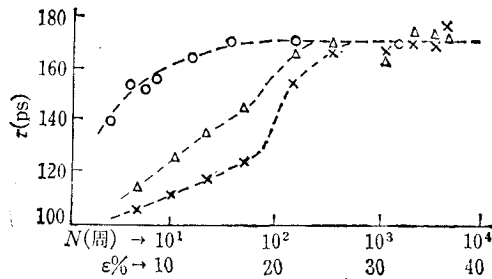


图 4 τ_{1A} 和 τ_{1B} 随加工量的变化

○ 为 $\tau_{1A} \sim \varepsilon\%$; Δ 为 $\tau_{1A} \sim \log N$; \times 为 $\tau_{1B} \sim \log N$

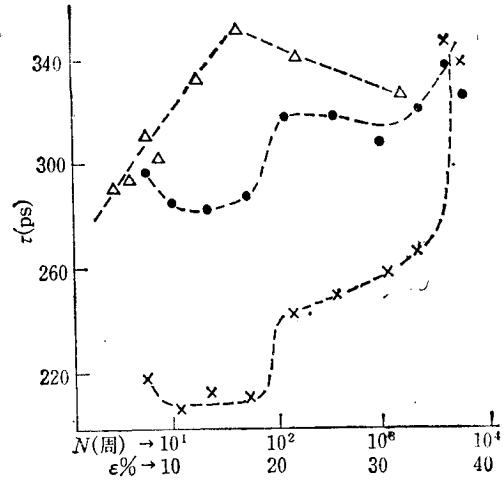


图 5 τ_{2A} 和 τ_{2B} 随加工量的变化

Δ 为 $\tau_{2A} \sim \varepsilon\%$; \bullet 为 $\tau_{2A} \sim \log N$; \times 为 $\tau_{2B} \sim \log N$

获模型估算上述缺陷浓度随疲劳周数的变化, 并检验上述推断和所用模型的合理性.

在过渡元素金属中, 晶格缺陷对正电子有较强的吸引势, 因而有较强的捕获能力. 很多实验事实包括本文结果证明, 带割阶的位错、小空位团和空隙等都是正电子的有效捕获中心. 因此, 忽略正电子从带割阶的位错中的逃逸, 以及不考虑正电子从带割阶位错向空位团的转移都是合理的假定. 换句话说, 可以将多晶镍疲劳过程中产生的带割阶的位错与空位团看作彼此独立的 e^+ 捕获中心, 从而利用简单三态捕获模型估算缺陷浓度及其它参量.

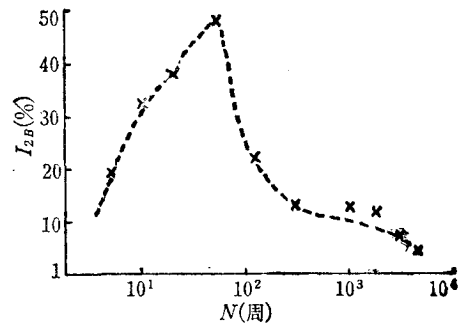


图 6 I_{2B} 随 N 的变化

根据这一模型,在疲劳镍样寿命谱中除作为本底成份的 τ_2^0 和 τ_3^0 以外,尚有三个寿命成份:

$$(1) \tau_1 = \tau_{ap} = 1/(\tau_f + K_{dv} + K_{vc}) = 1/(\tau_1^0 + K_{dv} + K_{vc}). \quad (1)$$

$\tau_1 = \tau_{ap}$ 叫做 e^+ 表观自由湮没寿命. 式中 K_{dv} 和 K_{vc} 分别表示带割阶的位错和空位团对 e^+ 的捕获速率,且 $K_{dv} = R_{dv}C_{dv}$, $K_{vc} = R_{vc}C_{vc}$, R 为比捕获速率, C 为缺陷浓度.

(2) $\tau_2 = \tau_{dv}$, 即 e^+ 在带割阶的位错中的湮没寿命. 这里 τ_2 或 τ_{dv} 等于 τ_{1A} 或 τ_{1B} 的饱和值,即 168ps.

(3) $\tau_3 = \tau_{vc} \simeq \tau_{2B}$, 即 e^+ 在空位团中湮没寿命. 在不同疲劳阶段其数值如第三节中 3 所述,并可参见表 2.

在本文采用的多指数拟合三组份分析中, τ_1 未直接分解出;但作者根据经验,推断和承认下式的正确性,即

$$\tau_{1B} \simeq \tau_M = (\tau_1 I_1 + \tau_2 I_2)/(I_1 + I_2). \quad (2)$$

τ_M 表示平均寿命. 这是将分析结果用于上述模型的关键. 考虑到 τ_1 这一短寿命成份在解谱时对 τ_{2B} 可能的影响(使 τ_{2B} 略低些),在计算 $N = 5-50$ 周内的有关参数时使用 τ_{2B} 的平均值,即 209ps. 这也是上述 $\tau_{vc} \simeq \tau_{2B}$ 中近似符的来由.

在上述说明的基础上,可采用下列简单三态捕获模型表达式¹⁾:

$$\begin{aligned} K_{dv} &= [\tau_M(1/\tau_f - I_3/\tau_3) - I_M]/(\tau_2 - \tau_M) \\ &\simeq [\tau_{1B}(1/\tau_1^0 - I_{2B}/\tau_{2B}) - I_{1B}]/(\tau_{dv} - \tau_{1B}). \end{aligned} \quad (3)$$

$$K_{vc} = I_3(\tau_1^{-1} - \tau_3^{-1}) \simeq I_{2B}(\tau_1^{-1} - \tau_{2B}^{-1}). \quad (4)$$

在计算 K_{vc} 时, τ_1 值可从 (2) 式导出;导出时所需的 I_2 可由 (3) 式提供. 在由 K 值估算缺陷浓度时,因缺乏必要的实验数据,对于带割阶的位错采用了比捕获速率 R 的理论计算值,即 $R_{dv} = 0.3\text{cm}^2\text{s}^{-1[10]}$. 计算 C_{vc} 时采用铝中空位团对 e^+ 的比捕获速率的理论计算值^[11]. 这是因为在铝和镍中空位团对 e^+ 的束缚能很接近. 对包含 2—3 个空位的空位团,取 2 空位和 3 空位的平均值,即 $R_{vc} = 6.8 \times 10^5\text{ns}^{-1}$;与此类似,对包含 3—4 个空位的空位团,取 $R_{vc} = 8.7 \times 10^5\text{ns}^{-1}$. 总之,估算出的缺陷浓度仅应有量级上的意义. 表 3 列出模型估算结果. 可以看出,在多晶镍疲劳过程中产生的带割阶的位错和空位团浓度量级是合理的. 此外, τ_1 的估算值也是合理的,与 e^+ 被缺陷捕获逐渐达到饱和的趋势一致. τ_f 值与参考镍样中分解出的实验值 τ_f^0 很接近.

表 3 简单三态捕获模型估算结果

循环周数 N	K_{dv} (ns^{-1})	C_{dv} (cm^2)	K_{vc} (ns^{-1})	C_{vc} (at%)	τ_1 (ps)	τ (ps)
5	1.70	5.67×10^9	1.59	2.34×10^{-6}	78	102
10	3.95	1.25×10^{10}	4.38	6.44×10^{-6}	56	104
20	5.63	1.88×10^{10}	6.60	9.70×10^{-6}	46	104
50	8.17	2.72×10^{10}	12.40	1.82×10^{-5}	33	102
120	39.0	1.30×10^{11}	9.54	1.42×10^{-5}	16	116
300	很大	$\sim 10^{12}$	降低	降低	很小	94
>300	饱和	饱和	更低	更低	$\rightarrow 0$	—

1) 何元金等编,正电子湮没谱学基础,清华大学正电子湮没讲习讨论班资料(上册), (1983), 317 页.

四、结 语

本工作用正电子湮没寿命谱方法提供了多晶镍恒应变拉-压疲劳过程中除带割阶的位错外空位团形成及大致尺寸的实验证据。空位团形成开始于疲劳过程的较早期。本文还提供了多指数拟合分析方法分解复杂寿命谱, 并用于简单三态捕获模型的例证。我们认为, 空位聚集现象在疲劳损伤断裂中的作用也许值得进一步考虑。

参 考 文 献

- [1] J. C. Krosskreutz *et al.*, *Phys. Letters*, **28A**(1969), 621.
- [2] K. G. Lynn *et al.*, *J. Phys. Stat. Sol.*, (a) **22** (1974), 731.
- [3] K. G. Lynn *et al.*, *Metallurgical Transaction*, **7A** (1976), No. 4.
- [4] H. E. Hjelmroth *et al.*, *Nuovo Cimento*, Series II **41B** (1977), 284.
- [5] N. Nishiwaki *et al.*, *Positron Annihilation*, Proc. of the 5th Intern. Conf. on Positron Annihilation, p. 177.
- [6] 王淑英, 高能物理与核物理, **7**(1983), 408.
- [7] G. Dlubek, *J. Phys. F*, **9**(1979), 1961.
- [8] K. G. Lynn, *et al.*, 同文献 [5] p. 119.
- [9] R. M. Nieminen *et al.*, 同文献 [5] p. 395.
- [10] B. Bergensen *et al.*, *Solid State Commun.*, **24**(1977), 421.
- [11] R. M. Nieminen *et al.*, *Appl. Phys.*, **20**(1979), 181.

POSITRON ANNIHILATION STUDY OF CRYSTAL DEFECTS DEVELOPED DURING FATIGUE PROCESS OF PURE POLYCRYSTALLINE Ni

WANG SHU-YING Ji GUO-KUN

(*Institute of High Energy Physics, Academia Sinica*)

HOU YAO-YONG Li Li

(*Department of Physics, Lanzhou University*)

ABSTRACT

Positron annihilation lifetime spectra and Doppler broadening lineshapes of positron annihilation radiation energy were measured for the tension-compression fatigued Ni specimens under constant strain amplitude and for the cold rolled ones which were used for comparison. A few of the formers were selected for TEM observation. A lifetime component that can be associated with e^+ lifetime in vacancy clusters developed during fatigue process was resolved by using a multi-exponential fitting method. It is 209, 255 and >300 ps on average in different ranges of fatigue respectively. The change of its relative intensity seems associated with increase of the concentration of the small vacancy clusters at early stage and growth of its dimension afterwards.

Hence, this work provides an experimental evidence for the formation and clustering of vacancies as well as the development of a great number of jogged dislocations in fatigued Ni. The concentration of these defects were estimated by using a simple three state e^+ trapping model. This work also provides an illustration of the utility of multi-exponential fitting method to complex lifetime spectra and to the above mentioned trapping model.