

强流脉冲电子束辐照下单晶铝中的 堆垛层错四面体^{*}

关庆丰^{1)†} 陈波²⁾ 张庆瑜³⁾ 董闯³⁾ 邹广田⁴⁾

1) 江苏大学材料学院, 镇江 212013)

2) 中国科学院长春光学精密机械及物理研究所应用光学国家重点实验室, 长春 130033)

3) 大连理工大学三束材料国家重点实验室, 大连 116024)

4) 吉林大学超硬材料国家重点实验室, 长春 130012)

(2007 年 3 月 11 日收到 2007 年 5 月 9 日收到修改稿)

利用强流脉冲电子束技术对单晶铝进行了辐照, 并利用透射电镜对强流脉冲电子束诱发的空位簇缺陷进行分析. 实验结果表明, 强流脉冲电子束能够诱发位错圈、孔洞甚至堆垛层错四面体这种通常在高层错能金属中不能形成的空位簇缺陷, 并且三种不同类型的空位簇缺陷的形核过程并不同时发生, 三种空位簇缺陷存在着密切的关系. 根据实验结果提出了堆垛层错四面体形成与生长机理.

关键词: 强流脉冲电子束, 堆垛层错四面体, 单晶铝, 空位簇缺陷

PACC: 6170P, 6180, 8140

1. 引 言

当高能粒子辐照金属时, 最为常见的结构缺陷是空位簇形式的结构缺陷, 这些缺陷往往在高温时也能保持稳定, 因而对金属的机械性能会产生很大的影响. 在核辐照和宇宙射线辐射环境下, 材料由于辐照损伤而造成的失效过程和服役寿命是决定核能安全和宇航器安全的关键问题之一, 而通过辐照后空位簇缺陷的变化对辐照损伤进行研究被公认为目前最为有效的研究方法之一. 与位错、晶界、层错及孪晶等线缺陷和面缺陷相比, 空位簇缺陷由于尺寸小、难于观察和表征, 人们对空位簇缺陷形成与生长过程知之甚少, 因此, 通过表征的方法深入研究这些空位簇缺陷的形成和生长机理以及演化规律, 对研究空位簇缺陷对机械性能和物理性能的影响将会起到十分重要的作用.

面心立方金属与合金中空位簇结构缺陷有三种存在形式, 即孔洞(voids)、堆垛层错四面体(stacking fault tetrahedra)以及空位型位错圈(vacancy - type dislocation loops). 堆垛层错四面体(SFT)是一种空位

型缺陷, 1959 年, Silcox 等^[1]利用 TEM 在淬火的金中发现了堆垛层错四面体, 这种类型的缺陷是四个 {111} 平面上的空位型层错沿 $\langle 110 \rangle$ 晶向相交而成, 最终形成一个完整的四面体结构^[1,2]. 在随后的时间里, 众多的研究者在这一领域开展了广泛的研究, 并发现 SFT 是低层错能面心立方(fcc)金属与合金经高温淬火、大塑性变形尤其是载能束辐照处理后经常出现的一种空位型缺陷^[3-6].

由于 SFT 的形成过程极为迅速, 加之其尺寸的限制(几纳米到几百纳米), 其形成机理和表征只能通过计算机模拟和透射电镜来实现. 关于 SFT 的形成机理, 虽然已有许多报道, 但到目前为止仍不清楚^[6]. 目前主要的问题是缺少有效的技术获得 SFT 形成过程中不同形成阶段的形态和表征方面的实验证据.

铝是堆垛层错能最高的面心立方单质金属, 其对称性也最高. 多年来, 人们一直认为在堆垛层错能高的面心立方金属尤其是纯铝中不能出现堆垛层错和 SFT, 这也被以往大量的实验所证实. 然而, Kiritani^[7]于 1999 年报道利用高速大变形的方法对纯铝进行作用后在其中发现了 SFT, 但迄今为止还

^{*} 国家自然科学基金(批准号 50671042)和江苏大学高级人才基金(批准号 07JDC032)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: guanqf@ujs.edu.cn

未见辐照条件下纯铝中出现 SFT 的报道。

强流脉冲电子束(HCPEB)是近年来出现的一种新型材料载能束表面改性技术^[8]。在脉冲电子束轰击材料的瞬时过程中,较高的能量(10^8 — 10^9 W/cm²) 在非常短的时间内(几纳秒到几微秒)沉积在材料的表层(几十微米),造成材料表面的快速加热和冷却,甚至使材料表层溶化、蒸发并快速凝固,在此过程中诱发的应力场能够引起材料表面快速而强烈地变形。与传统方法不同,这种脉冲电子束如此强烈,可以期待材料表面将会出现许多新的结构现象,并可以利用脉冲时间短的特点研究新结构不同阶段的形成与生长规律。

本文利用强流脉冲电子束装置对单晶 Al 样品进行表面处理,利用透射电镜(TEM)表征各种结构缺陷的晶体学特征,研究空位簇缺陷形成与演化规律以及各种缺陷之间的关系,重点研究 SFT 形成机理。

2. 实验过程与方法

图 1 为 HCPEB(Nadezhda-2)装置示意图,该设备的主要技术指标见表 1。爆炸电极发射脉冲电子

束,改变电极与靶材的距离可控制辐照的能量密度,有关该设备的细节可参阅文献[8—10]。

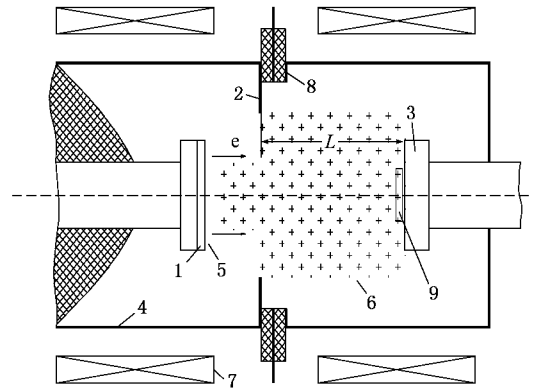


图 1 Nadezhda-2 强流脉冲电子束装置工作原理示意图 1. 阴极 2. 阳极 3. 工作靶 4. 真空室 5. 阴极等离子体 6. 阳极等离子体 7. 线圈 8. 火花源 9. 样品

采用纯度为 99.99% 的单晶铝样品为实验材料,并加工成 10 mm × 10 mm × 12 mm 的试样,在进行电子束表面处理之前,将试样的某一表面(接近(111)取向)进行抛光,然后利用 Nadezhda-2 强流脉冲电子束装置对抛光表面进行强流脉冲电子束处理,工艺参数如表 2 所示。

表 1 强流脉冲电子束装置主要技术指标

电子束能量/keV	能量密度(J/cm ²)	脉冲时间/μs	脉冲频率/Hz	束流/kA	束斑/mm
10—40	1—6	3—6	0.1 或 0.2	~ 10	φ60

表 2 电子束处理样品的实验参数

样品	轰击次数	脉冲电压/kV	真空度/10 ⁻⁴ Pa	能量密度(J/cm ²)	脉冲时间/μs
单晶铝	1	20	1.3	~ 1	3.5
	5	20	1.0	~ 1	3.5
	10	20	1.2	~ 1	3.5

利用线切割从大块样品上沿平行于处理表面方向切割厚度约为 1 mm 的薄片,研磨辐照表面的对面,利用 980 型半自动精密凹坑研磨仪继续研磨辐照表面的对面至可进行电解双喷的程度,再用电解双喷减薄仪(电解液为 5% 的 HClO₄ 酒精溶液)进行最终减薄,用 H-800 型透射电子显微镜(TEM)观察,加速电压为 175 kV。

3. 实验结果

图 2(a)为一次辐照后样品中缺陷结构的 TEM

像,可以看出一次辐照后材料表层出现了大量的位错圈结构,这些可见位错圈的尺寸大约为几纳米到几十纳米。由于辐照过程中的快速加热和冷却,在热影响区内会产生大量的非平衡热空位,这些空位很容易聚集成簇并形成一定的空位簇结构,如位错圈。以往对淬火铝的研究表明,从能量观点考虑,高层错能金属尤其是铝中位错圈的形成比 SFT 更为有利^[6]。除位错圈之外,还观察到另一种缺陷结构,如图 2(b)所示,该缺陷的形状类似于缺角的四面体,尺寸与位错圈大体相当,值得注意的是,这些缺角四面体缺陷与位错圈同时存在,而位错在此局部区域

内完全消失.

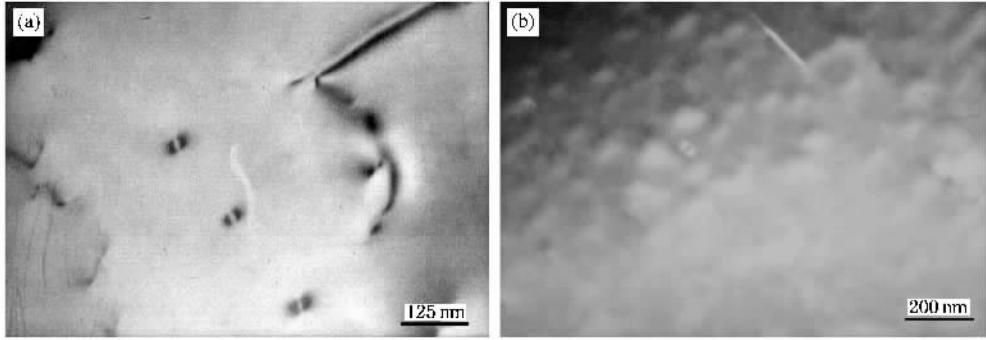


图 2 一次 HCPEB 辐照后的缺陷结构 (a)位错圈 (b)位错圈与截角四面体

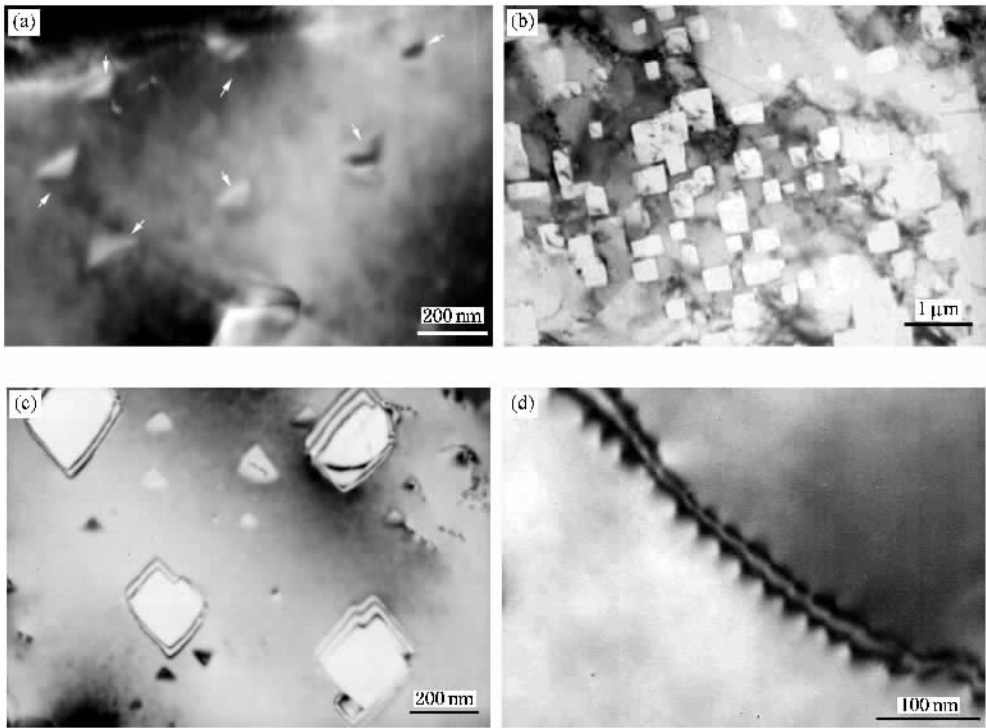


图 3 五次 HCPEB 辐照后的缺陷结构 (a)堆垛层错四面体 (b)孔洞 (c)堆垛层错四面体与孔洞 ; (d)SFT 墙

图 3 为五次辐照后样品表层中的缺陷结构,图 3(a)为明场 TEM 像,从中可以看出,此时出现了大量的尺寸约为 $0.1 \mu\text{m}$ 的三角型缺陷(如箭头所示),这种三角形缺陷是典型的 SFT 形貌.选用不同的衍射操作对其进行系统的暗场 TEM 像研究表明,该三角形缺陷为 $\{111\}$ 晶面所包围,表明该缺陷确实为 SFT.图 3(b)为 $[100]$ 取向的明场 TEM 像,显示在该样品中还存在大量的方形孔洞,这些孔洞是空位簇缺陷的另一种形式,其尺寸大约为 $0.1\text{--}0.5 \mu\text{m}$;值得注意的是方形孔洞和 SFT 可以同时地存在于同一

区域,而该区域却没有位错的存在,位错圈也彻底消失.如图 3(c)所示,这表明位错圈与 SFT 以及 SFT 与方形孔洞之间存在着密切的联系.从 3(c)还可以看出,除了大的 SFT 之外,还能观察到非常稠密的小三角形缺陷,其尺寸很小,约几纳米,不容易分辨,但从其衬度来看这些小三角形缺陷很可能是小的 SFT.这些小 SFT 十分丰富,但其分布并未呈现出特殊的规律.图 3(d)显示了另一有趣的现象,在此样品的某一区域形成了两列 SFT 墙.

10 次轰击处理后,试样中的 SFT 又消失.孔洞

结构仍然存在,其尺寸和形状与经过 5 次轰击的试样没有明显的变化,见图 4(a)。然而,三角形缺陷被

一些黑点缺陷所取代,如图 4(b)所示,位错数量明显增多。

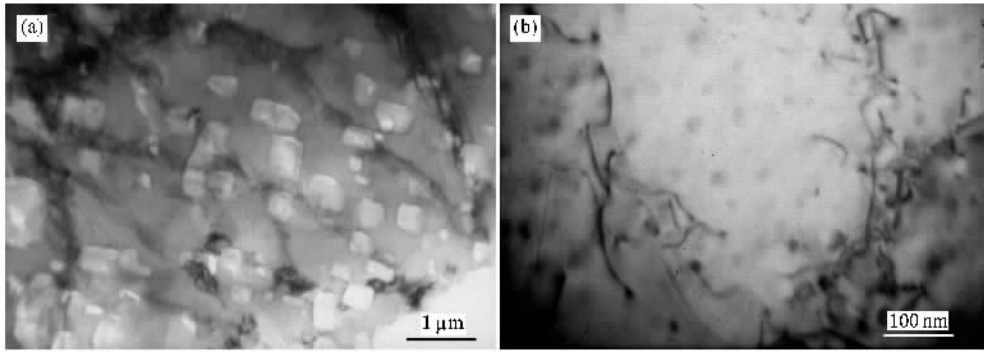


图 4 十次 HCPEB 辐照后的缺陷结构 (a) 空洞 (b) 位错

4. 讨 论

在 HCPEB 轰击时,注入的能量在几微秒内大部分转变为热量,在这种热效应的作用下产生了分散的过饱和的空位,并且这些空位有聚集为空位簇的趋势。本文的实验结果显示,利用强流脉冲电子束照射单晶铝试样可以形成三种空位簇缺陷:位错圈、SFT 和空洞,更加有趣的是在 HCPEB 照射下三种不同类型的空位簇缺陷的形核过程并不同时发生。

1 次轰击时,首先出现的缺陷主要为位错圈和截角的四面体。在此实验条件下,位错圈和截角四面体同时存在,并且截角四面体有在位错圈附近形核的趋向,如图 2(b)所示,很少能够观察到空洞和完整四面体形状的 SFT。5 次轰击后,大量空洞和 SFT 形成,而在此时的试样中位错圈完全消失,空洞和

SFT 同时存在,如图 3(c)。也就是说堆垛层错四面体与空洞和位错圈均有紧密的联系。目前的实验结果似乎说明这三种缺陷的形成次序是:先形成位错圈,接着是 SFT,最后为空洞。关于三种空位簇缺陷形成次序的实验证据到目前为止几乎没有报道,尤其是在纯金属中,这或许是由于这些空位簇尺寸很小,很难对他们进行精确的表征。然而,主要原因可能在于这些空位簇缺陷形成的时间间隔非常短。从这个意义上讲,强流脉冲电子束提供了一种研究空位簇缺陷形成机理的有效途径。

到目前为止关于 SFT 的形成机理仍然不太清楚。目前至少有两种模型可以描述在面心立方(fcc)金属的(111)面 SFT 的形成过程。第一种模型是以空位簇聚集到(111)面为前提,随后崩塌成为位错圈或 SFT^[2]。第二种模型是类似于空位富集区发生的相变过程,导致在层叠区直接形成 SFT^[11]。

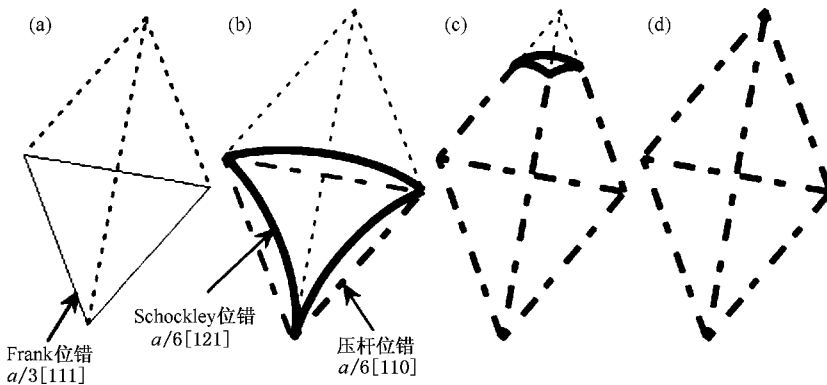


图 5 形成 SFT 的顺序阶段

在 fcc 结构中的(111)面内,沿[110]型方向的

Frank 位错将按 $aa \rightarrow ad + da$ (Thompson 符号)的方式

发生反应,结果在与(111)面相交的(11 $\bar{1}$)面中扩展为一个压杆位错和 Shockley 位错.如果是从圆形的 Frank 位错开始扩展,这种扩展将从三个[110]型的方向开始,如图 5(a)所示,在某些条件下,可以按图 5(a)(b)(c)(d)发展,直到三个 Shockley 位错相遇并在它们的滑移面的交线上合并为压杆位错为止.最后的结果是一个四面体,四面体的边上是压杆位错,沿着它面上是堆垛层错.从能量角度考虑,可以把四面体的稳定性与容纳同样数目点缺陷的半径为 R 的圆形 Frank 位错圈的稳定性做比较^[11],如果

$$R \leq \frac{4\tau}{f} \left(1 - \frac{1}{\pi^{1/2} 3^{1/4}} \right) \approx 2.3 \frac{\tau}{f}, \quad (1)$$

τ 为压杆位错的线张力, f 为堆垛层错能,此时四面体比位错圈更稳定,因此,如果 $f \leq \frac{\mu b}{80}$ 时^[10],四面体成为稳定的缺陷结构.这一机制可以很好地解释低层错能金属中 SFT 的形成,然而,铝的堆垛层错能 $f = \frac{\mu b}{45}$ ^[11],不能满足上述条件,因此位错圈应更为稳定,即按照常规的观点铝中不可能出现 SFT 缺陷. Hirsch 等对高温淬火铝的 TEM 观察中确实发现了许多位错圈^[6],但这一常规的机理不能解释本文中的实验现象.

我们认为这种从能量角度出发的观点无论是在理论上还是在实验中均不够完善.原因有以下几个方面:首先基于能量考虑的观点仅当不同类型缺陷之间的转变是由于热激活导致时才成立,而这并不是唯一的情况.另外,根据 Kiritani 的研究结果^[7],任何一种空位簇缺陷的能量至多是空位形成能的百分之几十,这便意味着在过饱和空位中,系统可以通过形成任何一种空位簇来降低能量.因此,对于空位簇的开始形成,最重要的是反应过程而不是最后缺陷簇的能量,即 SFT 缺陷形成的决定性因素是其形成的动力学过程. Kiritani^[7]等人利用高速大变形的办法在纯铝中发现 SFT 也有力地支持上述观点.

传统理论认为, SFT 的稳定性与其尺寸密切相关^[2],当 SFT 达到一定尺寸时, SFT 将发生转变而不能稳定存在,可达到的最大尺寸与其层错能有关,层错能越大,其最大的稳定尺寸越小.值得注意的是,本研究中的空位簇缺陷的尺寸足够大以至可以很容易地观测到, SFT 的尺寸甚至达到了 100 nm,与层错能极低的金(Au)中的 SFT 尺寸大体相当,明显超出了传统理论的范围.在其他面心立方金属中还未曾发现过类似现象,即使是在层错能与 Au 相当的金

属铜(Cu)中也从未有过尺寸如此之大的 SFT 方面的实验报道,而 Kiritani^[7]等人利用高速大变形的办法在纯铝中中发现的 SFT 尺寸为 5 nm 以下.这可能归结于在辐照表层中极高的变形速度以及形成的大量空位, Pogrebnjak 等利用正电子湮没技术研究了 HCPEB 辐照后纯铁中点缺陷^[12],结果发现, HCPEB 辐照后材料表层中的非平衡空位密度比辐照前高 10 个量级.在如此巨大的空位密度下,通常 SFT 的形成机理可能不再适合解释本文的实验结果.这表明在类似于脉冲电子束和高速大变形这样的极端处理条件下,即在极高的变形速度和极高的空位密度下,常规的 SFT 形成机理不再适用,有必要发展新的 SFT 形成机理.

根据上述观点,空位密度越高,从位错圈向 SFT 转变所需要的能量越低.我们的实验研究表明,观察到的大尺寸 SFT 大于 100 nm,其中包含的空位数量达到 10^6 数量级,表明 HCPEB 轰击诱发的空位密度相当高(估计超过 10^{20} m^{-3}).在拥有如此高空位密度的单晶铝试样中以及极高的变形速度的情况下,很容易实现从位错圈到 SFT 的转变.因此,当变形速度超过某一临界值时,常规的 SFT 形成机理不再适用,位错圈先按照图 5 的方式转变为截角四面体.根据上面提及的第二种理论模型,作为 SFT 核心的截角四面体可以通过吸收 HCPEB 辐照而产生的空位来长大,所形成的 SFT 的尺寸大小依赖于截角四面体周围的空位密度大小.随后, SFT 又作为孔洞的核心继续吸收空位,当 SFT 的尺寸增长到足够大以致不能稳定存在时便形成了孔洞.当然,有关大尺寸 SFT 形成机理以及空位簇缺陷之间的相互关系尚需更多的实验证据和理论分析加以支持.

5. 结 论

本文利用 Nadezhda-2 强流脉冲电子束系统对单晶铝样品进行辐照,通过改变辐照次数研究不同阶段下诱发的空位簇缺陷,对这些空位簇缺陷在形成过程中的不同形成阶段的形态进行了表征.实验结果表明,一次辐照后诱发出位错圈和截角四面体,五次辐照后诱发出堆垛层错四面体和孔洞,十次辐照后堆垛层错四面体消失,孔洞和位错是缺陷的主要形式,空位簇缺陷出现的先后次序为位错圈、堆垛层错四面体、孔洞.高空位密度和极高的变形速度是单晶铝中形成堆垛层错四面体的根本原因.

- [1] Silcox J , Hirsch P B 1959 *Philos. Mag.* **4** 72
- [2] Kiritani M 1997 *Materials Chemistry and Physics* **50** 133
- [3] Daulton T L , Kirk M A , Rehn L E 1996 *Microstructure Evolution During Irradiation* , Vol. 438 of MRS Symposium Proceedings , edited by Dale B P , Alexander E , Cheung N W , Skorupa W (Materials Research Society , Pittsburgh , PA ,) , p 318
- [4] Nordlund K , Gao F 1999 *Applied Physics Letter* . **74** 2720
- [5] Daulton T L , Kirk M A , Rehn L E 2000 *Philosophical Magazine A* **80** 809
- [6] Hirth J P , Lothe J 1992 *Theory of Dislocations* , 2nd ed. (Krieger , Malabar , FL)
- [7] Kiritani M 1999 *Philosophical Magazine Letter* . **79** 797
- [8] Proskurovsky D I , Rotshtein V P , Ozur G E *et al* 1998 *J. Vac. Sci. Technol.* **16** 2480
- [9] Qin Y , Wang X G , Dong C , Hao S Z , Liu Y , Zou J X , Wu A M , Guan Q F 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 3043 (in Chinese) [秦颖、王晓刚、董 闯、郝胜智、刘 悦、邹建新、吴爱民、关庆丰 2003 物理学报 **52** 3043]
- [10] Guan Q F , An C X , Qing Y , Zou J X , Hao S Z , Zhang Q Y , Dong C 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3927 (in Chinese) [关庆丰、安春香、秦 颖、邹建新、郝胜志、张庆瑜、董 闯、邹广田 2005 物理学报 **54** 3927]
- [11] Friedel J 1964 *Dislocation* (Pergamon Press) p96
- [12] Pogrebnjak A D , Mikhailiov A D , Pogrebnjak N A , Tsvintarmaya V , Lavrentiev V I , Iljashenko M , Valyaev A N , Bratushka S , Zecca A , Sandrik R 1998 *Physics Letter A* **241** 357

Stacking fault tetrahedra in single-crystal aluminum induced by high-current pulsed electron beam *

Guan Qing-Feng^{1)†} Chen Bo²⁾ Zhang Qing-Yu³⁾ Dong Chuang³⁾ Zou Guang-Tian⁴⁾

¹⁾ School of Material Science and Engineering , Jiangsu University , Zhenjiang 212013 , China)

²⁾ State Key Laboratory of Applied Optics , Changchun Institute of Optics , Fine Mechanics and Physics , Chinese Academy of Sciences , Changchun 130033 , China)

³⁾ State Key Laboratory of Materials Modification by Laser , Ion and Electron Beams , Dalian University of Technology , Dalian 116024 , China)

⁴⁾ State Key Laboratory of Superhard Materials , Jilin University , Changchun 130012 , China)

(Received 11 March 2007 ; revised manuscript received 9 May 2007)

Abstract

The specimens of single-crystal aluminum were irradiated with high current pulsed electron beam (HCPEB). The vacancy cluster defect microstructure has been investigated by using transmission electron microscopy (TEM). The results show that three types of vacancy clusters including dislocation loop , void and even stacking fault tetrahedron (SFT) , which are not normally formed in metals with high SFT formation energy , can be formed in single-crystal aluminum specimens irradiated with HCPEB . The nucleation process of three types of vacancy clusters do not appear at the same time . There is a close relationship between the three types of vacancy clusters . Based on the experimental results , a possible mechanism of SFT formation and evolution was presented .

Keywords : high current pulsed electron beam , stacking fault tetrahedral , single-crystal aluminum , vacancy cluster defects

PACC : 6170P , 6180 , 8140

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50671042) and the Science Foundation of Jiangsu University (Grant No. 07JDC032).

† Corresponding author. E-mail : guanqf@ujs.edu.cn