

# 强流脉冲电子束辐照诱发多晶纯铝中的空位缺陷簇结构\*

关庆丰<sup>†</sup> 程笃庆 邱冬华 朱 健 王雪涛 程秀围

(江苏大学材料科学与工程学院, 镇江 212013)

(2008 年 10 月 22 日收到, 2008 年 12 月 10 日收到修改稿)

利用强流脉冲电子束(HCPEB)技术对多晶纯铝样品进行辐照,采用透射电子显微镜详细分析了辐照诱发的空位簇缺陷. HCPEB 辐照后,在辐照表层内形成了大量的四方形空位胞,其间包含位错圈和堆垛层错四面体(SFT)等类型的空位簇缺陷. 1 次辐照后,空位胞内产生空位型位错圈,5 次辐照则主要产生 SFT,10 次辐照后,空位胞内产生的空位簇缺陷主要是位错圈,局部区域也观察到了 SFT 缺陷,在产生 SFT 的附近区域具有很低的位错密度或者几乎无位错出现. HCPEB 辐照产生的瞬间加热和冷却诱发了幅值极大且应变速率极高的应力,这一因素导致的整个原子平面的位移可能是 SFT 形成的原因所在.

关键词:强流脉冲电子束,多晶纯铝,空位簇缺陷,堆垛层错四面体

PACC:6170P,6180,8140

## 1. 引言

铝是堆垛层错能最高的面心立方(fcc)单质金属,铝及铝合金也是广泛使用的结构材料.但在载能束辐照条件下很容易在纯铝内部诱发包括点缺陷(簇)在内的结构缺陷,这些缺陷的形成将会严重降低材料的机械性能和物理性能<sup>[1,2]</sup>.

由于点缺陷簇尺寸很小,很难通过实验的方法对其进行观察和表征,使得人们对点缺陷簇的形成与生长过程知之甚少.因此,通过表征的方法深入研究点缺陷簇的形成机理及演化规律,有助于了解点缺陷簇对机械性能和物理性能的影响规律,同时对预测辐照后材料的服役性能也会起到十分重要的作用.

强流脉冲电子束(HCPEB)辐照能够在材料表层引起极为快速的加热和冷却.作为一种高能量密度沉积条件下的超快材料变形手段,HCPEB 辐照可以导致材料力学性能的显著变化,受到包括空间技术、核技术、国家安全以及材料改性等领域的普遍关注,具有重要的学术价值和工程应用背景.另外,我们前期的研究工作表明,HCPEB 辐照能够在材料表层诱

发大量的包括点缺陷(簇)在内的结构缺陷<sup>[3-5]</sup>,是一种研究超快变形条件下结构缺陷特征及演化规律的有力工具.有鉴于此,本文利用 HCPEB 技术<sup>[6]</sup>对多晶纯铝样品进行辐照处理,并利用透射电镜(TEM)对辐照后形成的空位簇缺陷进行分析.

## 2. 实验方法

选择纯度为 99.9% 的多晶纯铝做为实验材料,将实验材料加工成 10 mm × 10 mm × 6 mm 的试块,试样经过磨光抛光之后在 Nadezhda-2 型强流脉冲电子束设备上表面电子束轰击处理.试验参数见表 1.用于透射电镜观察的薄膜采用从基体一侧预减薄、凹坑减薄,最后进行双喷电解抛光的方法制备而成.利用 H-800 型透射电子显微镜观察样品中的缺陷结构.

表 1 电子束处理参数

| 样品 | 电子束能量 /keV | 能量密度 /J·cm <sup>-2</sup> | 靶源距离 /mm | 轰击次数 |
|----|------------|--------------------------|----------|------|
| Al | 25.09      | 4                        | 140      | 1    |
|    | 25.09      | 4                        | 140      | 5    |
|    | 25.09      | 4                        | 140      | 10   |

\* 国家自然科学基金(批准号 50671042)和江苏大学科技创新团队及高级人才基金(07JDC032)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: gquanf@ujs.edu.cn

### 3. 实验结果及分析

图 1(a)为辐照前纯 Al 样品 $[110]$ 取向的 TEM 照片,图 1(b)为其相应的选区电子衍射图.可以看出原始样品中的缺陷结构主要是由各种位错组态构成的,样品中没有观察到任何类型的点缺陷簇结构.

HCPEP 辐照后,原始组织发生了很大的变化.图 2(a)是 $[001]$ 取向向下观察到的 TEM 像,插图为选区电子衍射图.由图 2(a)可以看出辐照样品中形成了大量的四方形胞状区域,选区电子衍射图显示这些四方形的胞壁为 $\{200\}$ 晶面.大量的实验分析显示

$[001]$ 取向向下四方形胞的投影尺寸最大,胞的形状随晶体取向的不同也会发生变化,许多情况下胞的形状不再呈现为棱角分明的四方形(如图 2(b)中箭头所示).另外,四方形胞的衬度较亮,有些胞已经透明,说明四方形胞所处位置的样品厚度相对较小.较大胞的尺寸通常在  $0.3\text{--}0.5\ \mu\text{m}$  左右,但也存在许多尺寸较小的四方形胞(图 2(a),(c)),有时也能在衬度较暗的胞壁附近观察到胞的重叠(图 2(c)).辐照次数越多,胞的数量就越多.胞内的位错密度通常较胞外低,胞外以位错缠结结构为主.电子衍射显示胞壁内外无取向差,位错线甚至可以穿过胞壁,如图 2(c)所示.

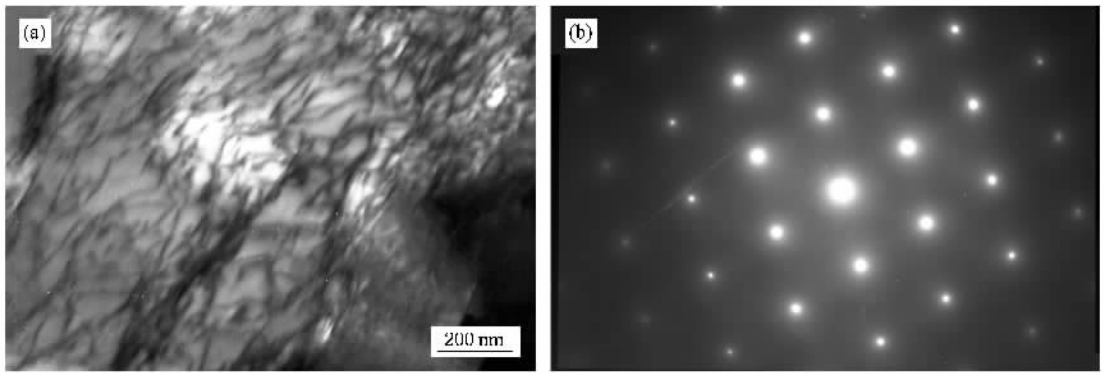


图 1 原始 Al 样品中的微观结构 (a)位错组态 (b) $[110]$ 取向电子衍射图

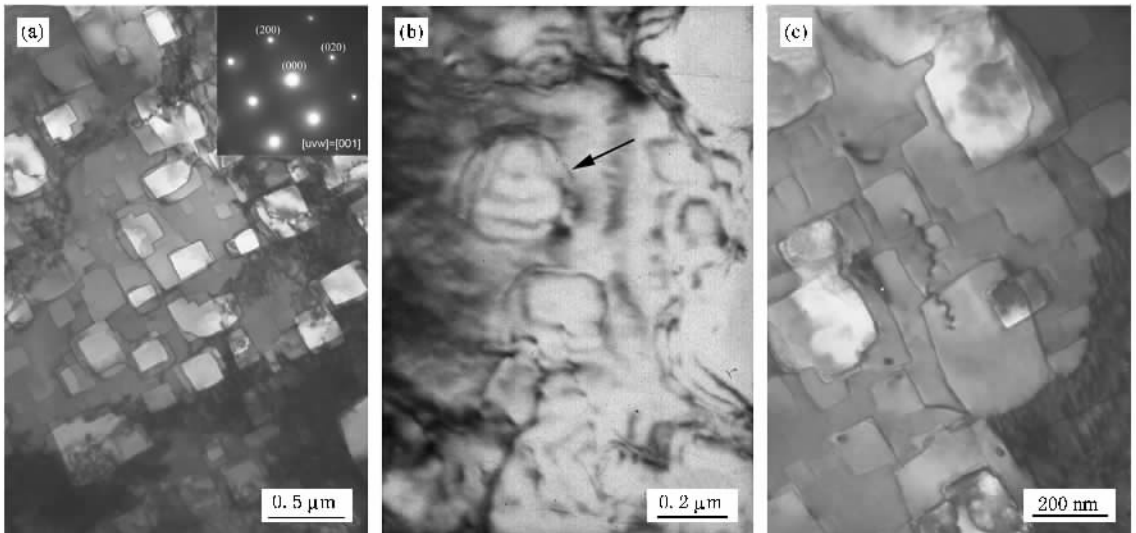


图 2 十次 HCPEP 辐照后 Al 样品中的空位胞结构 (a) $[001]$ 取向下的空位胞结构 (b)其他取向下的空位胞结构 (c)位错线穿越空位胞边界

关于这些四方形胞的形成机理,我们仍然不太清楚.但从其衬度特征来看,可以确定胞状区域内的

密度比胞外低,这似乎预示着 HCPEP 辐照在胞状区域中诱发了大量的空位或空位团.有些研究结果显

示类似于图 2(a) 中的四方形胞(或孔洞)与样品制备过程中的空位团沿某晶体取向择优腐蚀有关<sup>[7]</sup>. 本实验中用于观察的 TEM 样品是 5% 高氯酸乙醇溶液电解抛光制备而成, 在此过程中, 高氯酸乙醇溶液可对纯铝中的空位团产生择优腐蚀. 因此, 四方形胞的观察结果能够间接地反映空位(团)的密度和分布情况.

图 3 为 HCPEP 辐照后四方胞内的 TEM 像. 图 3(a) 显示 1 次辐照后即可产生缺陷簇结构, 即所谓的黑点缺陷. 这些缺陷簇分布上没有明显的规律, 尺寸极小, 约在 2—20 nm 范围内. 较大的缺陷簇(如箭头所示)清楚地显示这些黑点缺陷为位错圈结构, 即所谓的 Frenkel 位错圈<sup>[8]</sup>. 这表明铝原子在 HCPEP 辐照下离开了正常的位置, 随后产生了空位(vacancy)和填隙原子(interstitial atom), 即 Frenkel 缺陷. 由于铝为面心立方金属,  $\{111\}$  密排面具有最低的表面能, 因此过饱和空位的凝聚应该优先地沿  $\{111\}$  面结成空位盘. 当空位盘足够大时, 造成崩塌而形成 Frenkel 位错圈. 实验显示胞内观察到的 Frenkel 位错

圈在 TEM 观察的过程中能够保持稳定, 并无尺寸上的变化. 根据 Kiritani 等人的研究结果, 在 TEM 观察过程中电子束照射的情况下, 空位型位错圈的尺寸能够保持稳定, 而间隙型位错圈却无法保持其尺寸稳定性<sup>[9]</sup>. 据此可以判定我们在四方胞中观察到的 Frenkel 位错圈应为空位型位错圈.

图 3(b)(c) 分别为 5 次和 10 次 HCPEP 脉冲辐照后四方胞中缺陷簇结构的 TEM 像, 可以看出多次辐照使缺陷簇的数量密度显著升高, 但尺寸变化不明显. 观察结果显示 10 次辐照后四方胞内的位错密度相对更高, 较大尺寸空位型位错圈出现的概率也更大, 如图 3(d) 中的箭头所示. 5 次辐照后胞内的位错密度最低, 同时缺陷簇的数量密度也最高(图 3(b)), 其形状似乎也有变化, 许多缺陷簇不再是圆形, 而是成为带有棱角的多边形. 图 4 显示在有些情况下空位型位错圈不一定都伴随着位错同时出现, 在位错密度很低或几乎没有位错出现的四方胞中也经常观察到位错圈的出现, 其中包括一些尺寸较大的多边形位错圈, 如图 4 中的方框所示.

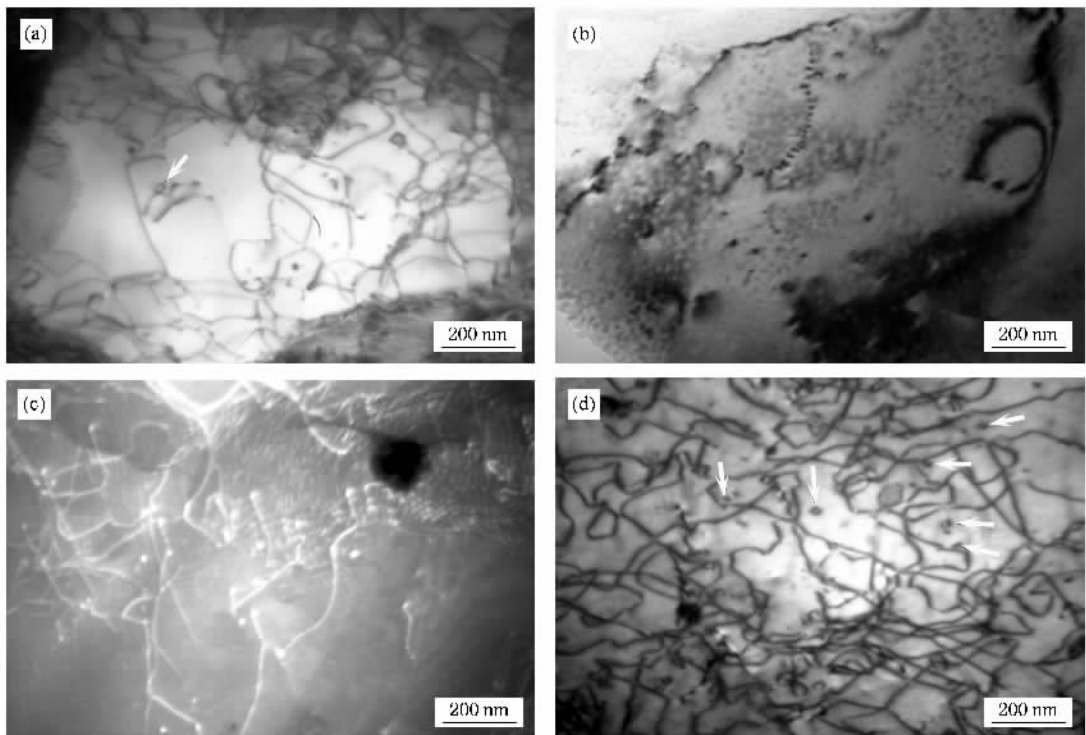


图 3 HCPEP 辐照后四方胞内的 TEM 像 (a)1 次辐照 (b)5 次辐照 (c)(d)10 次辐照

有趣的是在 5 次和 10 次辐照样品中的许多四方胞中, 还观察到了另外一种类型的缺陷簇结构. 图 5 显示了这种缺陷簇的形状、尺寸和分布情况. 5 次

辐照后(图 5(a)), 出现了大量尺寸约为 30 nm 的三角型缺陷, 通常以往文献都将这种三角形的缺陷当作堆垛层错四面体(SFT)<sup>[10]</sup>. 除了大的 SFT 之外,

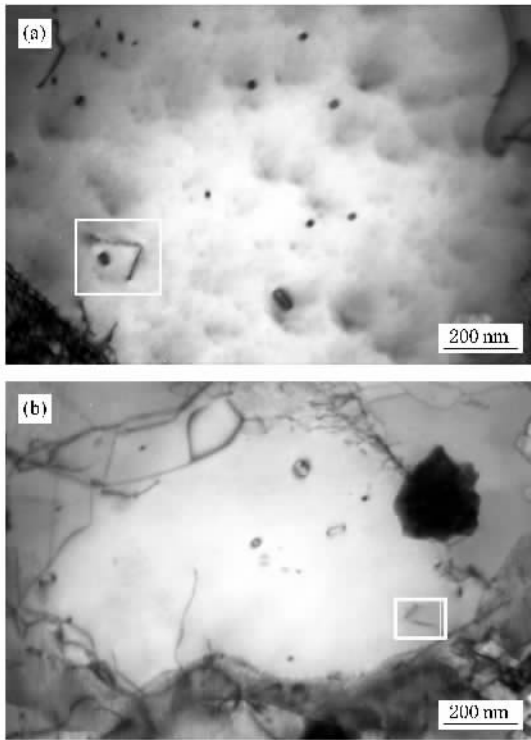


图 4 10 次辐照后空位胞中的位错圈结构

且十分均匀, 一般都在 10 nm 以下甚至更小. 由于尺寸太小不容易分辨出这些缺陷的形态, 但隐约可见这些小缺陷似乎也具有三角形的形状, 因此这些小尺寸缺陷簇也很有可能是 SFT. 这些小尺寸 SFT 十分丰富, 几乎覆盖整个四方形空位胞, 数量密度很大. 值得注意的是该区域几乎没有位错出现, 可见的位错圈结构也彻底消失.

图 5(b) 为 10 次辐照样中某一胞状区域中缺陷簇的分布情况, 其间也出现了一些三角形的缺陷簇结构(SFT). 图 5(b) 中可见的 SFT 都已被圆框标注出来, 尺寸大约为 20 nm 或更小, 其数量远远低于 5 次辐照样品. 与 5 次辐照样品不同的是, SFT 与位错能够在胞中同时出现, 但位错线几乎都是沿<sup>[110]</sup>晶向平行排列.

SFT 为典型的空位型缺陷簇, 到目前为止还没有发现过填隙型 SFT<sup>[10]</sup>, 此外, 我们在四方形胞状区域中观察到的位错圈均为空位形缺陷簇, 因此可以认为四方胞为包含大量空位和空位簇缺陷的空位胞.

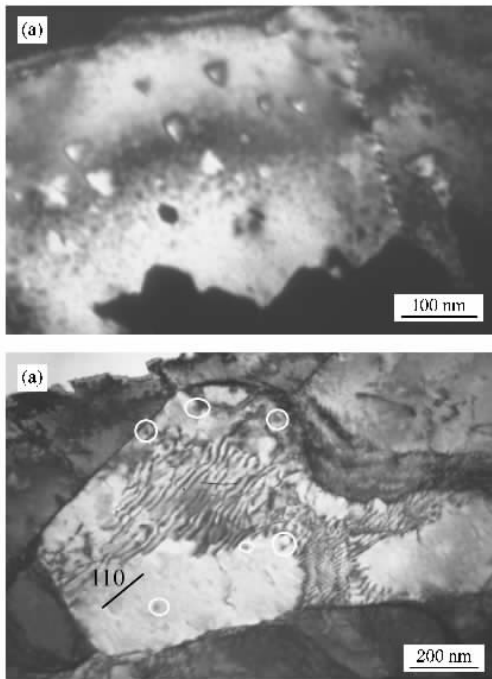
## 4. 讨 论

SFT 是低层错能 fcc 金属经高温淬火、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簇缺陷. Hirsch 等<sup>[11]</sup>利用透射电镜在淬火金样品中第一次观察到大量的三角形缺陷结构的出现, 并认为是四面体层错的投影.

图 6 为 Hirsch 等提出的堆垛层错四面体(SFT)形成过程的示意图. 在 fcc 结构中的(111)面内, 沿<sup>[110]</sup>型方向的 Frank 位错将按  $D\delta \rightarrow D\alpha + \alpha\delta$  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( $a = 1/6 \langle 110 \rangle$ )和 Shockley 位错( $a = 1/6 \langle 121 \rangle$ ). 如果是从圆形的 Frank 位错开始扩展, 这种扩展将从三个 110 晶向开始, 如图 6 所示, 在某些条件下, 可以按图 6(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, 四面体的棱边是压杆位错, 沿着它的四个面上是堆垛层错. 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<sup>[12]</sup>, 如果满足如下能量条件:

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

$\tau$  为压杆位错的线张力,  $f$  为堆垛层错能, 此时四面

图 5 HCPEP 辐照诱发的 SFT 结构 (a)5 次辐照样 TEM 暗场像  $g = (220)$  (b)10 次辐照样 TEM 明场像

还能观察到非常稠密的小缺陷簇结构, 其尺寸很小

体即应该比位错圈更稳定,因此,如果  $f \leq \frac{\mu b}{80}$  时<sup>[12]</sup>,四面体成为稳定的缺陷结构.这一机理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  $f = \frac{\mu b}{45}$ <sup>[12]</sup>,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形成 SFT 缺陷.

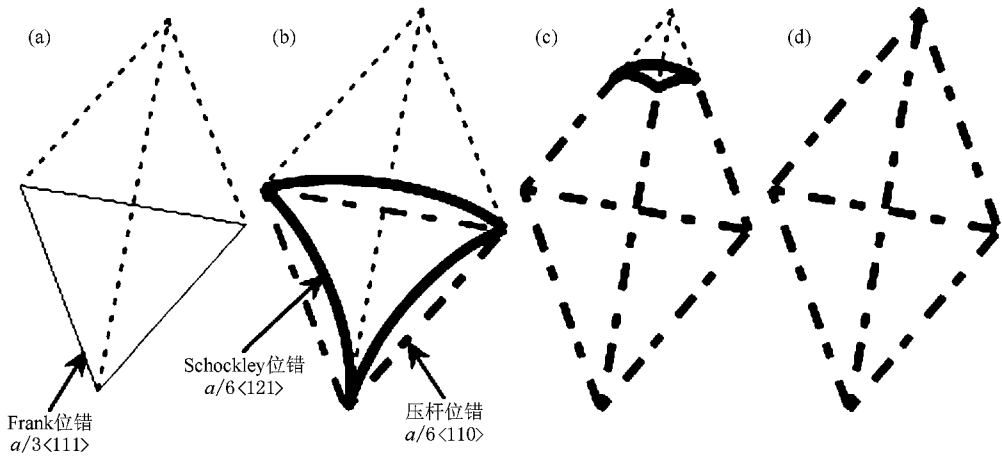


图 6 SFT 形成过程的示意图

到目前为止,在纯 Al 中观察到出现 SFT 缺陷方面的实验证据确实极为少见,似乎也证明了上述理论的正确性.然而, Kiritani 等人<sup>[13]</sup>于 1999 年利用高速机械变形的方在纯 Al 中发现了密度极高的 SFT 缺陷,与此同时却并没有伴随位错的出现.据此 Kiritani 提出了无位错塑性变形机理<sup>[14]</sup>,以此来解释 SFT 缺陷簇的形成过程.

按照 Kiritani 的无位错塑性变形机理,在应力幅值和应变速率极高的情况下,变形将不按照位错滑移机理进行,此时弹性变形必然开始增加,同时伴随内应力的增加.当内应力增加到足够大时,所有的原子都将处于一个不稳定的状态,倾向于克服邻近原子构成的势垒向下一个稳定的位置运动.这时原子的位移不仅仅是滑移机理中位错核心附近的个别原子参与,而是整个原子平面的原子都参与位移.即原子的移动是以原子面的方式完成的,而滑移机理中原子的位移是通过原子线(位错)完成的,这是两种机理的根本差别.如果{111}密排面上的原子同时沿着或接近 111 晶体方向位移,一旦发生原子面的错排即可形成层错或变形孪晶.原子面位移过程中可能会丢下一些原子,这样就会形成大量的点缺陷,这些点缺陷通过聚集就可以形成包括 SFT 在内的空位簇缺陷.

在 HCPEB 辐照材料的过程中,由于电子束能量较低(25 keV),不足以使被辐照材料产生碰撞离位.因此脉冲电子束辐照主要是以瞬间转变成热量的形

式与被轰击材料产生相互作用,以诱发应力的形式来产生空位.图 7 为经 5 次和 10 次 HCPEB 脉冲辐照后辐照表面的形貌像.可以看出,多次脉冲辐照后纯 Al 表层晶粒内部出现了透镜状的变形结构,通常这些透镜状的变形结构被认为是变形孪晶.在层错能较高的 fcc 金属中,只有幅值极大、应变速率极高的应力才有可能诱发孪生变形<sup>[15]</sup>.根据 Zou 等人的数值模拟结果<sup>[16]</sup>,HCPEB 脉冲辐照在纯 Al 表层诱发的应力可达 GPa 量级,应变速率达到  $10^4$ .因此,我们的实验条件与 Kiritani 等的实验条件比较相似;另外,图 5(a)显示 HCPEB 辐照诱发的 SFT 区域附近几乎没有位错出现,与 Kiritani 等人的实验结果也比较接近.尽管 Kiritani 的无位错塑性变形机理未能获得广泛的接受,但我们的实验结果似乎支持这一模型.

如上所述,在 HCPEB 辐照过程中,材料表层形成了大量的由于空位凝聚而形成的空位簇缺陷,那么必然也会形成数目相等的填隙原子,但我们的实验中并没有在四方形空位胞中发现填隙原子缺陷簇. Kiritani 的无位错塑性变形机理认为填隙原子都用于变形过程中材料形状的改变.与高速机械变形不同的是,HCPEB 辐照过程中材料表层的变形由于受到基体的束缚,其变形程度不会太大,即形状的改变用不着数量如此巨大的填隙原子去弥补;另一方面,假设所有的填隙原子都逃出表面似乎也不尽合理.

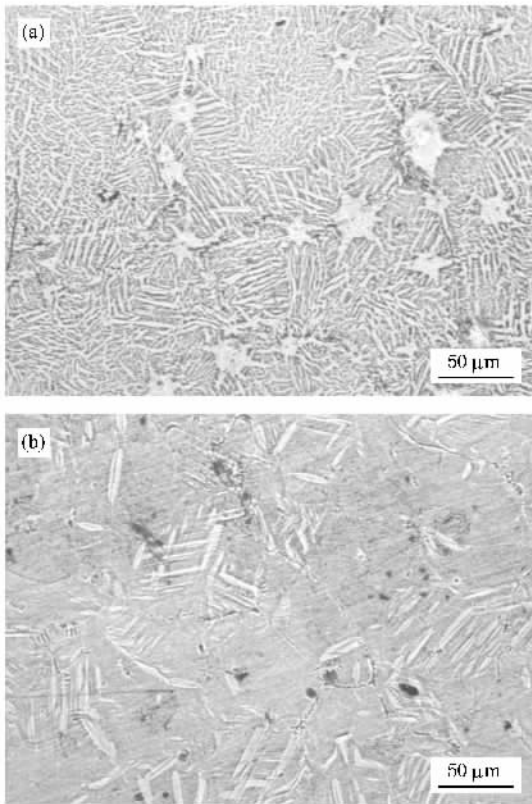


图7 HCPEP 辐照表面形貌 (a)5 次辐照 (b)10 次辐照

填隙原子簇的运动激活能很低<sup>[17]</sup>,其运动对应变场极为敏感,在应变场的作用下往往成堆地出现,相反空位簇则倾向于均匀分布.当材料被 HCPEP 辐照后,在应力作用下原子面离位后产生大量的点缺陷,空位之间的相互作用使其凝聚成空位簇,并均匀地分布于样品中.间隙原子也将在空位簇的周围凝聚成填隙原子簇,不同的是它们的分布很不均匀<sup>[18]</sup>.

Shimomura 对中子辐照后 Cu 和 Ni 在冷却过程中点缺陷的演化进行了计算机模拟研究<sup>[18]</sup>.分析表明,在冷却过程中的较高温范围内,残余的填隙原子簇将会在应变场的作用下沿  $110$  方向运动,因为  $110$  为原子密排方向,原子沿  $110$  方向运动具有最小的能量.填隙原子簇沿着哪个具体的  $110$  方向取决于空位团应力场的方向,一旦某个  $110$  方向与

应力场平行,那么填隙原子簇将会沿这个方向运动,而其他  $110$  方向则会被关闭,最终形成了填隙原子簇聚堆区.填隙原子簇缺陷主要以填隙形位错圈的形式存在,这些位错圈继续吸收填隙原子后将演化成复杂的位错结构,并诱发应变场.

空位缺陷由于坍塌而形成位错圈和 SFT 等空位簇缺陷,它们在高温下也会发生迁移.通常 SFT 的运动激活能较大,而有些空位簇(如未坍塌的空位团等)的运动激活能则较小<sup>[18]</sup>,在某些有利于迁移的方向上对应立场很敏感.这些空位簇(团)有时就会沿着填隙原子形成的位错结构诱发的应变场运动,因此一些沿着位错线运动的空位簇的聚集导致了高密度空位区域的形成,而该区域周围便会留下大量的位错结构.

图 5(b)中空位胞中的位错线彼此互相平行,可能就是填隙原子(簇)沿  $110$  方向聚集的结果.位错线上的波纹结构说明位错线位于样品的表面<sup>[8]</sup>,表明在辐照表层更容易发生填隙原子的聚集,即残留的填隙原子主要位于辐照表面附近.

## 5. 结 论

1. HCPEP 辐照后,样品表面局部区域形成了大量空位团,经择优腐蚀后形成四方时空位胞,其间包含大量的空位簇缺陷,而空位胞外则主要为位错缠结结构.

2. 1 次辐照可在空位胞内形成空位型位错圈,5 次辐照主要产生 SFT,10 次辐照产生的空位簇缺陷主要是位错圈,局部区域也能产生 SFT,产生 SFT 的区域位错密度很低或几乎无位错出现.

3. HCPEP 瞬间的加热和冷却能够诱发的幅值极大和应变速率极高的表面应力,这一应力导致的整个原子平面的位移是 SFT 形成的原因所在.

4. 空位胞中填隙原子(簇)聚集后能够诱发应变场,使填隙原子(簇)沿  $\langle 110 \rangle$  方向聚集,形成互相平行的位错结构.

[1] Fan X H, Chen B, Guan Q F 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 1829 (in Chinese) [范鲜红、陈波、关庆丰 2008 物理学报 **57** 1829]  
 [2] Fan X H, Li M, Ni Q L, Liu S J, Wang X G, Chen B 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6494 (in Chinese) [范鲜红、李敏、尼启良、刘世界、王晓光、陈波 2008 物理学报 **57** 6494]

[3] Guan Q F, Pan L, Zou H, Zou G T 2004 *J. Mmter. Sci.* **39** 6349  
 [4] Guan Q F, Chen B, Zhang Q Y, Dong C, Zou G T 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 392 (in Chinese) [关庆丰、陈波、张庆瑜、董闯、邹广田 2008 物理学报 **58** 392]

- [ 5 ] Guan Q F , Wang S Q , Cui X H , Zhang Q Y , Dong C 2007 *ISIJ Internationa* **47** 1375
- [ 6 ] Proskurovsky D I , Rotshtein V P , Ozur G E , Markov A B , Nazarov D S 1998 *J. Vac. Sci. Technol. A* **16** 2480
- [ 7 ] Mondaulf L F 1988 *Structures and Properties of Aluminum Alloy* ( Beijing : Metallurgical Industry Press ) p76 ( in Chinese [ 蒙多而福 L F 1988 铝合金的组织与性能( 中译本 ) 北京 : 冶金工业出版社 第 76 页 ]
- [ 8 ] Hirsch P B , Horne R W , Whelan M J 1956 *Philos. Ma.* **1** 677
- [ 9 ] Kiritani M , Yoshiie T , Kojima S *et al* 1994 *J. Nucl. Mater.* **192** 212
- [ 10 ] Kiritani M 1997 *Mater. Chem. Phys.* **50** 133
- [ 11 ] Silcox J , Hirsch P B 1959 *Philos. Mag.* **4** 72
- [ 12 ] Friedel J 1964 *Dislocation* ( Pergamon Press ) p96
- [ 13 ] Kiritani M , Satoh Y , Arakawak K , Ogasawara Y , Arai S , Shimomura Y 1999 *Philosophical Magazine Letter* **79** 797
- [ 14 ] Kiritani M 2003 *Materials Science and Engineering A* **350** 1
- [ 15 ] Guan Q F , An C X , Qin Y *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3927 ( in Chinese ) [ 关庆丰、安春香、秦颖等 2005 物理学报 **54** 3927 ]
- [ 16 ] Zou J X , Qin Y , Dong C , Wang X G , Hao S Z , Wu A M 2004 *J. Vac. Sci. & Tech. A* **22** 545
- [ 17 ] Hirsch P B 1958 *The physics of metals* , Vol. 2 ( Cambridge , Oxford ) p168
- [ 18 ] Shimomura Y , Mukouda I , Sugio K 1999 *Journal of Nuclear Material* **271-272** 225

## The vacancy defect clusters in polycrystalline pure aluminum induced by high-current pulsed electron beam<sup>\*</sup>

Guan Qing-Feng<sup>†</sup> Cheng Du-Qing Qiu Dong-Hua Zhu Jian Wang Xue-Tao Cheng Xiu-Wei

( College of Material Science and Engineering , Jiangsu University , Zhenjiang 212013 , China )

( Received 22 October 2008 ; revised manuscript received 10 December 2008 )

### Abstract

The specimens of polycrystalline pure aluminum were irradiated with high-current pulsed electron beam ( HCPEB ). The microstructure of vacancy defect clusters has been investigated in detail by using transmission electron microscopy ( TEM ). The results reveal that large numbers of vacancy cells including dislocation loop and even stacking fault tetrahedra ( SFT ) can be formed in the specimens of polycrystalline pure aluminum irradiated with HCPEB. For the specimen irradiated with one pulse , vacancy dislocation loops were formed in the vacancy cells. SFTs became the dominating structures after five pulses. For the specimen irradiated with ten pulses , dislocation loops were frequently present and SFTs were only formed in some local zones of vacancy cells. In the vicinity of SFT formation , dislocation-free or very low dislocation densities were observed. It is suggested that high stress and strain rate induced by rapid heating and cooling due to HCPEB irradiation could cause the shifting of whole atomic planes synchronously. This is the more probable mechanism of the formation of SFTs.

**Keywords** : high-current pulsed electron beam , polycrystalline pure aluminum , vacancy defect cluster , stacking fault tetrahedra

**PACC** : 6170P , 6180 , 8140

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

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail : guanqf@ujs.edu.cn