

强流脉冲电子束应力诱发的微观结构

关庆丰^{1)†} 安春香¹⁾ 秦颖²⁾ 邹建新²⁾ 郝胜志²⁾ 张庆瑜²⁾ 董闯²⁾ 邹广田¹⁾

¹⁾ 吉林大学材料科学与工程学院, 超硬材料国家重点实验室, 长春 130025)

²⁾ 大连理工大学三束材料改性国家重点实验室, 大连 116024)

(2004 年 10 月 22 日收到; 2005 年 1 月 12 日收到修改稿)

利用强流脉冲电子束装置在各种工艺条件下对奥氏体不锈钢、单晶铝及多晶铝等面心立方金属进行辐照处理. 利用扫描电子显微镜和透射电子显微镜等详细分析了辐照样品的变形组织与结构. 通过分析, 在一定程度上建立起强流脉冲电子束诱发的应力特征与变形结构之间的关系, 并对目前现有的几种应力波数值模拟结果进行了分析. 实验结果表明, 强流脉冲电子束能够在材料内部诱发 10^2 — 10^3 MPa 的应力, 其传播方式与材料的晶体结构关系密切. 这一应力是导致材料深层性能与微观组织结构发生变化的根源所在.

关键词: 强流脉冲电子束, 应力, 微观结构, 变形

PACC: 8160, 4180D, 7920K, 8140

1. 引言

利用强流脉冲电子束(HCPEB)对材料进行表面处理是近年来出现的一种新型材料表面改性技术^[1,2], 受到材料科学和表面科学工作者的广泛关注^[1-15]. 在脉冲电子束轰击材料的过程中, 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)沉积到材料的表层(几十微米), 造成材料表面的快速加热和冷却, 甚至使材料表层熔化、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的变形, 从而造成特殊的改性效果. 通常情况下, HCPEB 改性后材料表层的机械性能尤其是摩擦性能得到明显改善^[3], 并且有趣的是 HCPEB 处理还能导致处理表面下深达几百微米甚至更深处材料性能的变化^[3-7], 而这一区域明显超过了 HCPEB 处理的热影响区(HAZ)的范围, 许多研究者将这一现象归因于 HCPEB 轰击过程中诱发的应力波(stress wave), 并对此进行了模拟研究^[1,3-7,16,17]. 然而 HCPEB 在极短的时间内诱发的温度和应力耦合行为极其复杂, 很难对这种非平衡状态进行完整的描述. 另外, 现有的模拟结果也缺乏相应的实验结果加以验证, 因此到目前为止人们对

HCPEB 深层改性机制的认识还不是很清楚.

我们知道, 材料机械性能的改变源自于微观组织结构的变化, 即微观组织结构是连结加工行为和最终性能的纽带, 因此通过分析 HCPEB 改性后材料微观结构状态的改变是了解 HCPEB 改性机制的重要手段. 有鉴于此, 本文利用俄罗斯产 Nadezhda-2 型 HCPEB 设备对几种具有代表性的面心立方金属和合金进行表面改性处理, 详细分析 HCPEB 改性后材料微观组织结构的变化规律, 探讨应力及应力波与材料的作用机制.

2. 试验材料及试验方法

选择 AISI 304 (1Cr18Ni9Ti) 奥氏体不锈钢、纯度为 99.9% 的多晶纯铝以及单晶铝作为实验材料. 将各类样品加工成 10 mm × 10 mm × 10 mm 的试样, 试样经过磨光、抛光之后在俄罗斯产 Nadezhda-2 型 HCPEB 设备上表面进行电子束轰击处理. 该设备的主要技术指标见表 1, 试验处理参数见表 2. 处理试样表面和横截面形貌在光学显微镜和 JSM-5500 型扫描电子显微镜(SEM)上进行. 利用 H-800 型透射电子显微镜(TEM)观察样品的微观组织结构.

†E-mail: guanqingfeng@jlu.edu.cn

表 1 HCPEB 装置主要技术指标

电子束能量/keV	能量密度/ $J \cdot cm^{-2}$	脉冲时间/ μs	脉冲频率/Hz	束流/kA	束斑直径/mm
10—40	1—6	3—6	0.1 或 0.2	10	60

表 2 样品的电子束处理参数

样 品	电子束能量	能量密度	靶源距离	轰击次数
	/keV	/ $J \cdot cm^{-2}$	/mm	
单晶铝	15.0	1	180	1
	15.0	1	180	5
	26.78	4	160	1
	26.78	4	160	5
多晶纯铝	26.78	4	160	1
	26.78	4	160	5
	26.78	4	160	10
AISI 304 奥氏体不锈钢	25.09	4	140	1
	25.09	4	140	5
	25.09	4	140	10

3. 实验结果及分析

3.1. 不 锈 钢

图 1 为 AISI 304 不锈钢 HCPEB 改性后轰击表面以下显微硬度的分布, 硬度峰的最大值出现在热影响区(约 $10 \mu m$)^[6]之外的表面下方约 $80 \mu m$ 处. 1 次轰击硬化现象不明显, 多次轰击后硬化现象显著, 且 5 次轰击的硬度峰值高于 10 次轰击的硬度峰值. 显然该处的硬化与热作用无关. 通常认为, 奥氏体不锈钢的硬化是由于外加应力所产生的变形所引起的^[18], 因此, 可能是 HCPEB 诱发的应力使材料内部

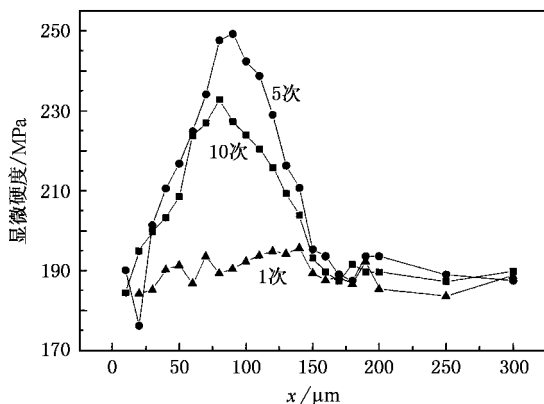


图 1 HCPEB 处理后 AISI 304 不锈钢表面以下显微硬度的分布

产生了变形结构.

图 2 为轰击后样品经王水腐蚀的横截面 SEM 像. 由图 2 可见, HCPEB 轰击后从表面至样品底部 (0—10 mm) 贯穿整个样品出现了许多平行于轰击表面的微裂纹, 1 次轰击产生的裂纹较细, 多次轰击裂纹较粗. 轰击次数越多微裂纹的数量就越多, 长度也越大, 这表明应力波的幅值很大. 微裂纹沿纵向的分布似乎也呈现一定的周期性规律, 1 次和 5 次轰击样品微裂纹间距大约为 $50 \mu m$, 10 次轰击样品微裂纹间距大约为 $30 \mu m$.

图 3 为 HCPEB 轰击 AISI 304 不锈钢后样品表层的 TEM 像. 从图 3 可见, 1 次轰击后出现了宽度较小(约 $20 nm$)的层错以及位错缠结结构(图 3(a)). 5 次轰击以后, 样品表层层错宽度明显增加, 达 $0.2 \mu m$. 较大的位错胞也开始出现, 如图 3(b)所示, 这说明位错缠结的程度更加强烈. 另外孪晶结构也大量出现(如图 3(c)所示), 孪晶与层错相交使层错发生偏移(如图 3(c)中的箭头所指), 说明层错的形成先于孪晶, 且孪晶周围的应力集中比较严重并产生较大的应变. 10 次轰击后的情况与 5 次轰击大体相同, 与 5 次轰击样品相比, 孪晶与堆垛层错相交使其发生更大的位移, 表明此时孪生变形引起更大的应变(图 3(d)中的箭头所指), 另外, 密度很高的小缺陷串(图 3(d)中的小白点)也开始出现. 5 次轰击与 10 次轰击另一明显的区别, 表现在彼此相交的孪晶带数量上, 10 次轰击样品比 5 次轰击样品具有更多的互相相交的孪晶带.

Byun^[19]在实验的基础上对不锈钢中的变形结构与外加应力的关系进行了总结, 并得出如下结论: (1) 当包括辐照在内的等效外加应力低于 $400 MPa$ 时, 变形结构为位错缠结结构; (2) 当应力范围为 $400—600 MPa$ 时, 尺寸小于 $1 \mu m$ 的小堆垛层错开始出现; (3) 当应力超过 $600 MPa$ 时, 大的堆垛层错与孪晶带成为主要的变形结构. 根据 Byun 的研究结果, 本实验中 1 次 HCPEB 轰击诱发的应力在 $400—600 MPa$ 范围内, 从 5 次轰击以后, HCPEB 轰击诱发的应力超过 $600 MPa$, 即在一定的轰击次数范围内 (1—5 次) HCPEB 轰击诱发的应力随轰击次数的增加而增加, 而后 (5—10 次) 稳定在 $600 MPa$ 以上.

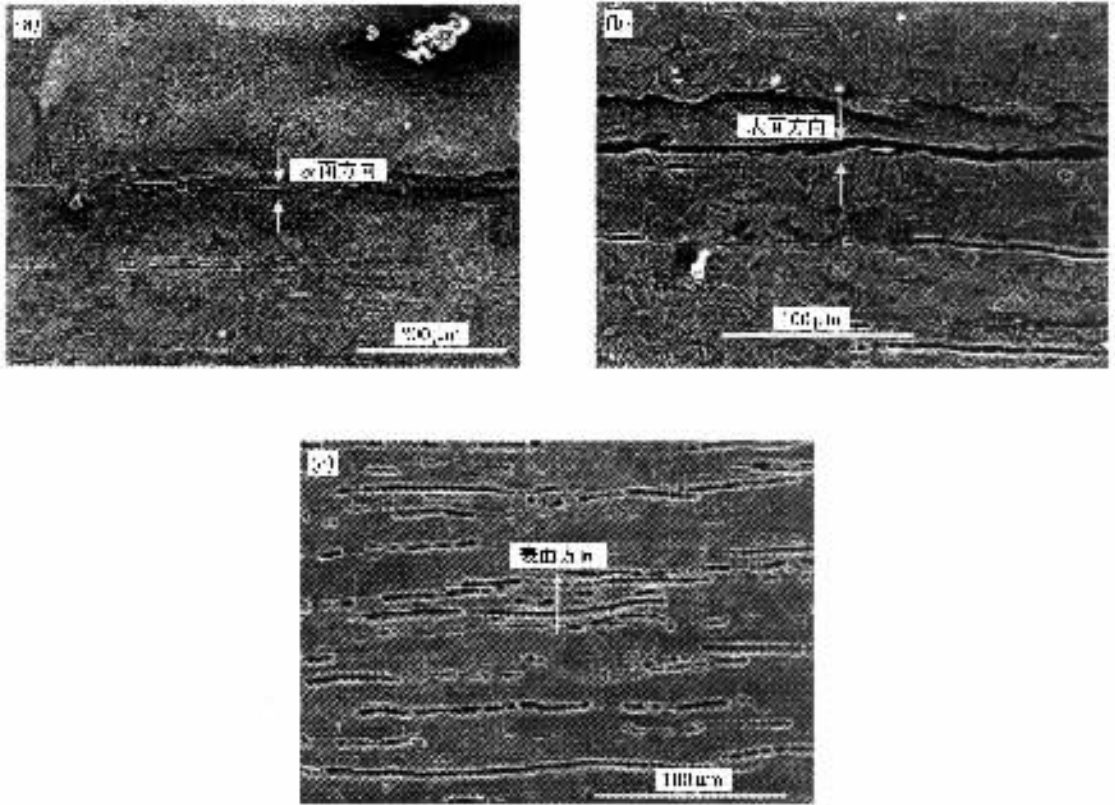


图2 HCPEB 轰击后 AISI 304 不锈钢横截面 SEM 像(样品经王水腐蚀) (a)1 次轰击 (b)5 次轰击 (c)10 次轰击

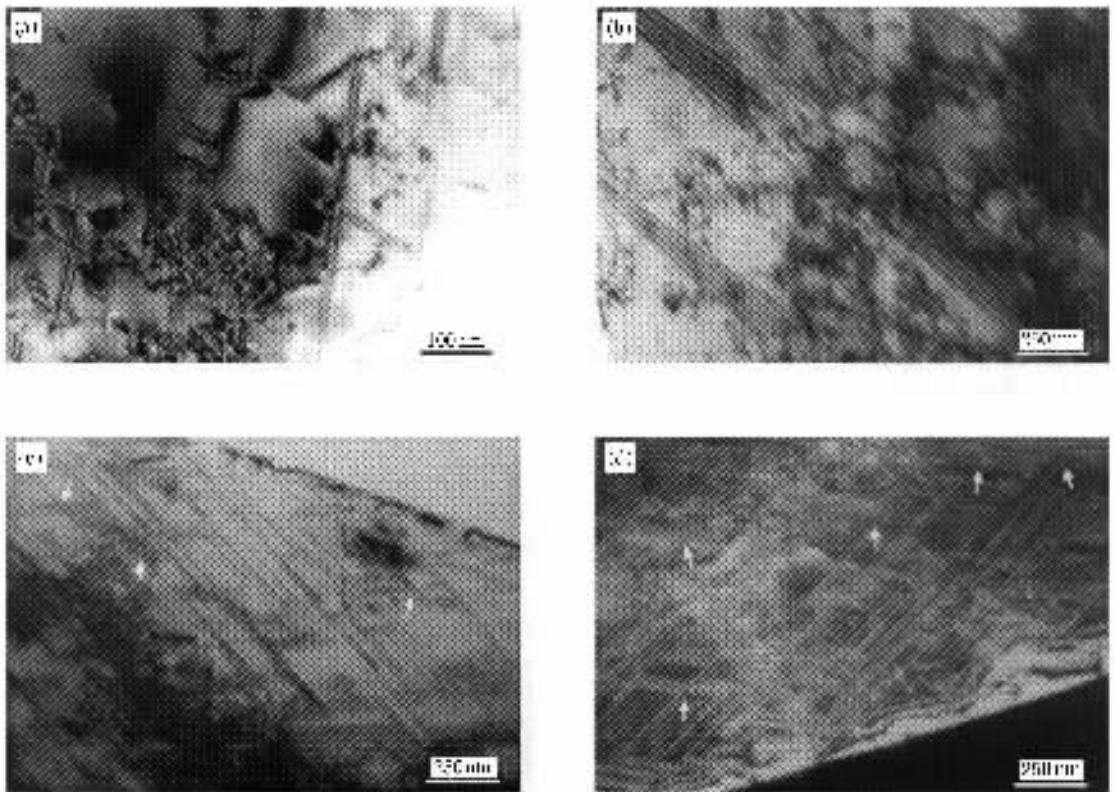


图3 HCPEB 轰击诱发 AISI 304 不锈钢表层中的变形结构 TEM 像 (a)1 次轰击 (b)5 次轰击后的堆垛层错与位错胞 (c)5 次轰击后的孪晶与堆垛层错 (d)10 次轰击后的孪晶与堆垛层错.(c)(d)中箭头所指处为孪晶与堆垛层错相交处

3.2. 纯 铝

图 4 为能量密度约为 4 J/cm^2 的 HCPEB 轰击单晶铝后,经氢氟酸乙醇溶液腐蚀后的横截面 SEM 像.由图 4 可见,1 次轰击后,从表面向样品内部延伸,出现许多锯齿状裂纹(图 4(a)).裂纹最深可达轰击表面下 $50 \mu\text{m}$,从表面开始的初始裂纹段与表面夹角为 45° ,相邻裂纹段互相垂直,裂纹周围有许多四方形的小坑,尺寸在 $1 \mu\text{m}$ 左右.从裂纹的特征可以推测这些裂纹是由应力诱发的,因为应力在与表面成 45° 角方向上幅值最大.从裂纹的走向可以看出,其传播路径与材料的晶体学取向具有一定的关系,应力在传播过程中逐渐衰减,并诱发许多晶体缺陷,如四方形的小坑,这些四方形缺陷有可能是应力诱发的空位缺陷相互聚集而造成材料局部密度降低所形成的.5 次轰击后未能观察到锯齿状裂纹,如图 4(b)所示,但四方形缺陷依然存在,且其分布与锯齿状裂纹相似,表明仍然有应力传播现象发生.

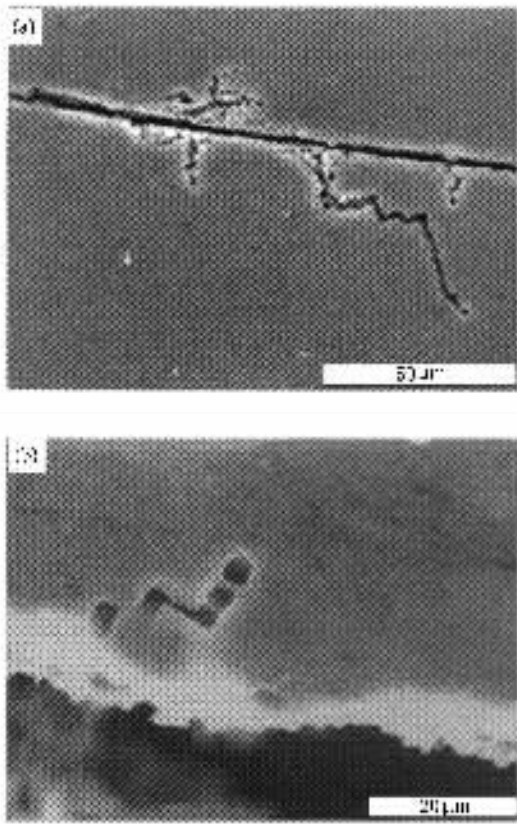


图 4 HCPEB 轰击后单晶铝横截面 SEM 像(能量密度 4 J/cm^2)
(a) 1 次轰击 (b) 5 次轰击

图 5(a) 为能量密度约为 1 J/cm^2 的 HCPEB 5 次轰击后单晶铝表面 SEM 像,由于能量密度较低,表

面没有熔化,但表面却出现大量的孪晶结构.这些孪晶互相平行,长度约为 $200 \mu\text{m}$,宽度约为 $10 \mu\text{m}$,形状为透镜状,内有中脊线,这说明 HCPEB 轰击能够使单晶铝以孪生的形式发生塑性变形.我们知道,基于位错滑移的变形机制是面心立方金属尤其是高层错能金属的主要变形机制,铝是层错能最高的单质金属,孪生变形极为困难,只有在极高的外加应力和极高变形速率的情况下铝中的孪生变形才有可能发生^[20].因此,这表明 HCPEB 轰击在表面产生了极高的应力,多晶铝的 HCPEB 表面改性处理也证实了这一点.图 5(b) 为变形量为 50% 轧制预变形的铝样品经过能量密度约为 4 J/cm^2 的 HCPEB 10 次轰击后表面形貌,熔坑与大量的孪晶带同时出现在表面.

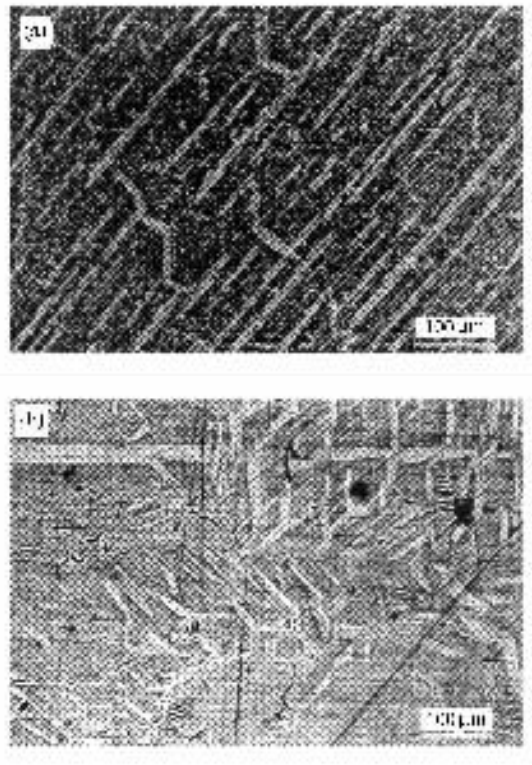


图 5 HCPEB 轰击后单晶铝与纯铝表面 SEM 像 (a) 单晶铝, 5 次轰击, 能量密度 1 J/cm^2 ; (b) 多晶纯铝, 10 次轰击, 能量密度 4 J/cm^2

Yamakov 等^[20]的研究表明,室温下多晶铝中孪晶的形成应力大约是 2.5 GPa ,并且该应力与多晶铝的剪切模量成正比.在本实验条件下,孪晶在表面未熔化的区域出现.考虑到接近于熔点的剪切模量约为室温的一半,根据这一估计,HCPEB 轰击可在表层诱发大约 1 GPa 的应力,这与 HCPEB 诱发的准静态应力的数值模拟结果比较接近^[16,17].

图 6 为能量密度约为 1 J/cm^2 的 HCPEB 轰击后

单晶铝表层 TEM 像.从图 6 可见,1 次轰击后出现了大量的位错环(dislocation loop)结构,如图 6(a)所示,5 次轰击后位错环消失,代之以大量的四方形孔洞(void),如图 6(b)所示.这些孔洞与样品制备过程中的空位团沿晶体取向择优腐蚀有关.在电解双喷过程中,无水高氯酸酒精溶液可对纯铝产生择优腐蚀,而纯铝在其他腐蚀液中也存在类似现象.例如,无水盐酸对铝的点腐蚀为立方坑,因为它对[100]方向的腐蚀比对其他方向快,但当含有水分时,对[111]方向的腐蚀则比较快,腐蚀坑是八面体形的^[21].因此,这些方形孔洞只是间接地反映空位团的密度和分布情况.位错环和孔洞都是典型的因空位聚集而形成的空位簇缺陷,表明 HCPEB 轰击后在材料表层诱发了高浓度的空位缺陷.在 5 次轰击后样品中 TEM 观察没能发现孪晶结构,说明图 5(a)的孪晶带只是出现在表层很薄的区域内,或者是 TEM 样品制备过程中由于样品的厚度与孪晶带接近,产生了所谓的结构松弛(structural relaxations)而使孪晶消失^[22].

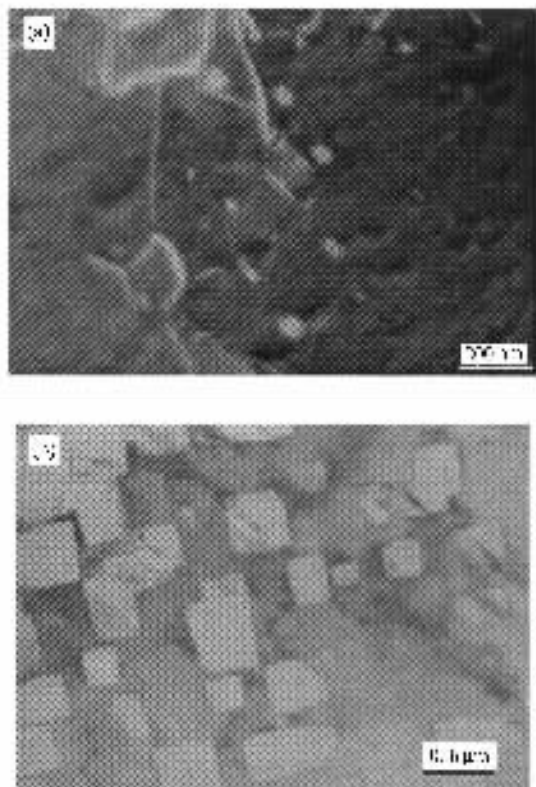


图 6 HCPEB 轰击后单晶铝表层 TEM 像(能量密度 1 J/cm^2)
(a) 1 次轰击 (b) 5 次轰击

图 7(a)为能量密度约为 4 J/cm^2 的 HCPEB 5 次轰击多晶铝样品后表层 TEM 像.从图 7(a)可见,孔

洞仍然是主要缺陷结构,有趣的是即使是超过热影响区的范围^[7],即在电子束辐照表面 $40 \mu\text{m}$ 以下直至 0.5 mm (甚至更深),这些方形孔洞仍然存在且密度与近表层大体相当.这表明脉冲电子束在材料表面形成的温度场并不是空位簇缺陷形成的唯一因素.图 7(b)为变形量为 50% 轧制预变形而未轰击多晶铝样品的 TEM 像.从图 7(b)可见,样品内部经轧制变形后也同样出现了大量的孔洞空位簇缺陷.这说明即使没有热作用,同样可以形成与脉冲电子束轰击所诱发的同样类型的空位簇缺陷,表明在温度场之外导致高密度空位簇缺陷形成的真正原因是脉冲电子束轰击表面过程中诱发的应力,且该应力幅值极大,并以应力波的形式向样品内部传播,导致样品深层空位簇缺陷的形成.

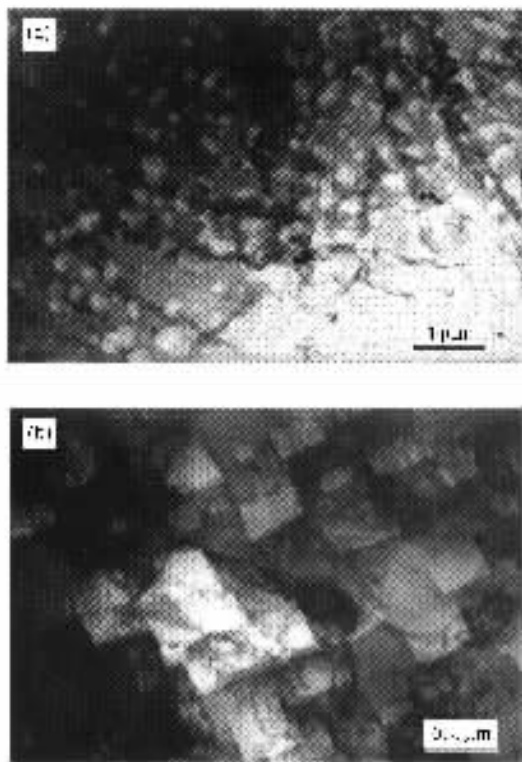


图 7 纯铝中孔洞的 TEM 像 (a) HCPEB 4 J/cm^2 5 次轰击,
(b) 变形量为 50% 轧制预变形多晶铝样品中的孔洞

4. 讨 论

Markov 等^[6]首先建立了 HCPEB 轰击诱发的温度场模型,并利用该模型进行模拟,很好地解释了许多实验现象. Proskurovsky 等^[2]进一步发展了 Markov 的模型,引进了应力波的概念,并对 HCPEB 轰击诱

发金属 Fe 中的应力波进行了模拟,但模拟结果应力波的幅值仅为 0.1 MPa 数量级,显然这一结果不能说明 HCPEB 轰击过程中结构与性能的明显改变.邹建新等^[17]将 HCPEB 轰击诱发的应力分为沿纵向传播的热应力波(thermal stress wave)和作用于横向的准静态热应力(quasistatic stress),模拟结果表明,纵向热应力波的幅值也约为 0.1 MPa 数量级,而表层横向准静态热应力的幅值则高达 10^2 — 10^3 MPa 数量级,与本实验结果比较符合.邹建新等的模拟结果能够解释我们的一些实验结果,如表面孪晶的形成(图 5(a)和(b))等,但仍然不能解释超过热影响区以外的深层结构变化.秦颖等^[16]通过更为深入的研究发现,脉冲电子束处理过程中,在材料表面未熔化的处理条件下,应力状态主要是材料表层随温度场变化的准静态应力以及由表面向内部传播的热弹性应力波,材料表面熔化后,由于次表层先熔化而向外喷发的反冲作用,将导致冲击热应力的产生并向材料内部传播,当材料由于动态屈服而出现塑性变形后,在冷却过程中也会产生高幅值的应力,且当温度降至室温后在材料表层会留有残余应力.根据材料的不同,表面准静态应力以及冷却过程中的应力峰值可达到 10^8 — 10^9 Pa 的数量级,而热应力波只有 0.02—0.03 MPa 左右,只有冲击热应力的峰值与准静态应力幅值相当,才是导致材料深层性能与结构变化的原因.本实验结果支持了文献[16]的数值模拟结果.

按照文献[16]的模型,不锈钢在脉冲轰击过程中,从次表层熔滴的形成到喷发所经历的时间约为 50 ns,形成的冲击热应力波的波长大约为 350 μm .本实验中观察到的纵向分布裂纹应为应力波所造成,其间距应近似对应冲击热应力波的波长,但实验结果(40—50 μm)与计算结果相差较大.我们经分析认为,这是由于计算过程中对液滴喷发时间的选取不当所造成的.在计算中液滴喷发过程是从次表层开始熔化到表层完全熔化而结束,这是液滴存在的最大时间.而在实际过程中,可能液滴尚未完全长大就已经喷发.根据本实验计算,液滴生成到喷发的时间间隔大约只有 6—7 ns.冲击热应力波形成后应当以熔坑为中心呈球面波向下传播,在横向上也有分量,如果在材料中造成裂纹,应呈弧形.但是在轰击过程表面会同形成大量的熔坑,这样就会有多个应力波同时向材料内部传播,其交互作用可能会抵消其

中的横向应力,使得应力波以近似平面波的形式纵向传播,从而造成本实验中观察到的平行于表面的裂纹.

另外,实验中还发现在一定的轰击次数范围内(1—5次)HCPEB 轰击诱发的应力随轰击次数的增加而增加,这可能和应力与结构缺陷的相互耦合有关.先前的轰击使被轰击材料产生了大量的结构缺陷,随后的轰击所产生的应力又与这些结构缺陷相互作用产生加工硬化效应,使得材料的屈服强度提高,从而对表面的热膨胀具有更大的约束力,在随后的轰击过程中准静态热应力以及冲击热应力幅值得以进一步增加.当然,关于这一点仍需理论模拟方面的研究和更多的实验证据加以验证.

实验结果显示,材料的晶体结构对应力波的传播方式有重要影响(见图4),而应力波的传播方式对所诱发的结构缺陷类型也有重要影响.从图4裂纹的形状即各裂纹段互相垂直这一特征看,裂纹传播似乎与{100}晶面的[001]方向平行,而在面心立方金属与合金中,通常情况下应力是沿{111}面的<110>方向通过位错滑移发生相互作用,因为面心立方金属中{111}为原子密排面,具有最低的能量,而位错沿<110>方向滑移花费最少的能量.这似乎预示着在脉冲电子束诱发的极高应力条件下应力与材料的作用机制有所变化,并最终导致变形机制与通常的滑移塑性变形机制可能会有所不同.

5. 结 论

1) HCPEB 轰击可使 1Cr18Ni9Ti 奥氏体不锈钢产生硬化和脆化,硬化峰值在轰击表面下约 80 μm 的热影响区以外.

2) 经 HCPEB 1 次轰击后,1Cr18Ni9Ti 奥氏体不锈钢表层的变形结构以位错缠结为主,HCPEB 诱发的应力在 400—600 MPa 之间,经 HCPEB 5 次轰击后变形结构以层错和孪晶带为主,应力超过 600 MPa.

3) HCPEB 轰击可在纯铝表面诱发孪生塑性变形,诱发的应力超过 1 GPa,单晶铝表层的变形结构以位错环及孔洞等空位簇缺陷为主,而无明显的位错及位错滑移迹象.

4) 在 HCPEB 轰击材料过程中,冲击热应力是导致材料深层性能与组织变化的根本原因.

- [1] Proskurovsky D I , Rotshtein V P , Ozur G E *et al* 1998 *J. Vac. Sci. Technol. A* **16** 2480
- [2] Proskurovsky D I , Rotshtein V P , Ozur G E *et al* 2000 *Surf. Coat. Technol.* **125** 49
- [3] Pogrebnjak A D , Ladysev V S , Pogrebnjak N A *et al* 2000 *Vacuum* **58** 45
- [4] Le X Y , Yan S , Zhao W J *et al* 2000 *Surf. Coat. Technol.* **128—129** 381
- [5] Qin Y , Wang X G , Dong C *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 3043 (in Chinese)[秦 颖、王晓刚、董 闯等 2003 物理学报 **52** 3043]
- [6] Markov A B , Rotshtein V P 1997 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **132** 79
- [7] Hao S Z , Yao S , Guan J *et al* 2001 *Current Appl. Phys.* **1** 203
- [8] Li R B , Dai Y B , Hu X J *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 3135 (in Chinese)[李荣斌、戴永兵、胡晓君等 2003 物理学报 **52** 3135]
- [9] Pogrebnjak A D , Isakov I F , Opekunov M S *et al* 1987 *Phys. Lett. A* **123** 410
- [10] Pogrebnjak A D , Shablya V T , Sviridenko N V *et al* 1999 *Surf. Coat. Technol.* **111** 46
- [11] Sorescu M 1998 *J. Alloys Compd.* **280** 251
- [12] Zhang Z 2002 *Chin. Phys.* **11** 389
- [13] Dong C , Wu A , Hao S *et al* 2003 *Surf. Coat. Technol.* **163—164** , 620
- [14] Proskurovsky D I , Rotshtein V , Ozur G E *et al* 2000 *Surf. Coat. Technol.* **125** 49
- [15] Pogrebnjak A D , Bratushka S , Boyko V I *et al* 1998 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **145** 373
- [16] Qin Y , Zou J X , Dong C *et al* 2004 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **225** 544
- [17] Zou J X , Qin Y , Dong C *et al* 2002 *J. Vac. Sci. Technol. A* **22** 545
- [18] Byun T S , Hashimoto N , Farrell K 2004 *Acta Materialia* **52** 3889
- [19] Byun T S 2003 *Acta Materialia* **51** 3063
- [20] Yamakov V , Wolf D , Phillpot S R *et al* 2002 *Acta Metall.* **50** 5005
- [21] Mondaulf L F 1988 *Structures and Properties of Aluminium 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]
- [22] Van Swygenhoven H 2002 *Science* **296** 66

Microstructure induced by stress generated by high-current pulsed electron beam

Guan Qing-Feng^{1)†} An Chun-Xiang¹⁾ Qin Ying²⁾ Zou Jian-Xin²⁾ Hao Sheng-Zhi²⁾
Zhang Qing-Yu²⁾ Dong Chuang²⁾ Zou Guang-Tian¹⁾

¹⁾(State Key Laboratory of Superhard Materials , College of Material Science and Engineering , Jilin University , Changchun 130025 , China)

²⁾(State Key Laboratory of Materials Modification by Laser , Ion and Electron Beams , Dalian University of Technology , Dalian 116024 , China)

(Received 22 October 2004 ; revised manuscript received 12 January 2005)

Abstract

Face-center cubic metal materials including austenite stainless steel , aluminum single crystal and multi-grained pure aluminum were irradiated by a high-current pulsed electron beam (HCPEB) source in different processes . The deformed microstructures were observed by using scanning electron microscopy and transmission electron microscopy . The relationship between stress characteristic and the microstructures has been analyzed . The current numerical simulations of the thermal-mechanical process of HCPEB treatment were also investigated by comparing with the present experimental results . The present experimental results suggest that the value of the stress induced by HCPEB lies between 10^2 — 10^3 MPa . The behavior of the stress propagation is closely related to the crystal structure of the material . This stress leads to the modification of the properties and the microstructures of the irradiated material in regions of greater depth .

Keywords : high current pulsed electron beams , stress , microstructure , deformation

PACC : 8160 A180D , 7920K , 8140

[†]E-mail : guanqingfeng@jlu.edu.cn