

一些合金相变问题的正电子湮没方法研究

苏世漳 马如璋 徐安泰 王欣竹 冯永荣 黄茹茵 滕霞

(北京钢铁学院)

王蕴玉 何永枢 黄懋容

(中国科学院高能物理研究所)

一、前言

正电子湮没技术在物理冶金研究中得到日益广泛的应用,例如对于金属中的缺陷、相变以及有序化等问题,已有许多研究工作^[1-7]。

本文讨论了正电子 γ 谱仪的高温真空加

热炉的设计与制作,测定了Fe—28at%Ni合金在不同热处理状态时的正电子平均寿命 $\bar{\tau}$ 及Doppler展宽S参数,依此探讨了该合金中的马氏体转变。同时还运用磁学和正电子湮没谱学的方法探讨了形变Ni₃Mn合金中有序化问题。

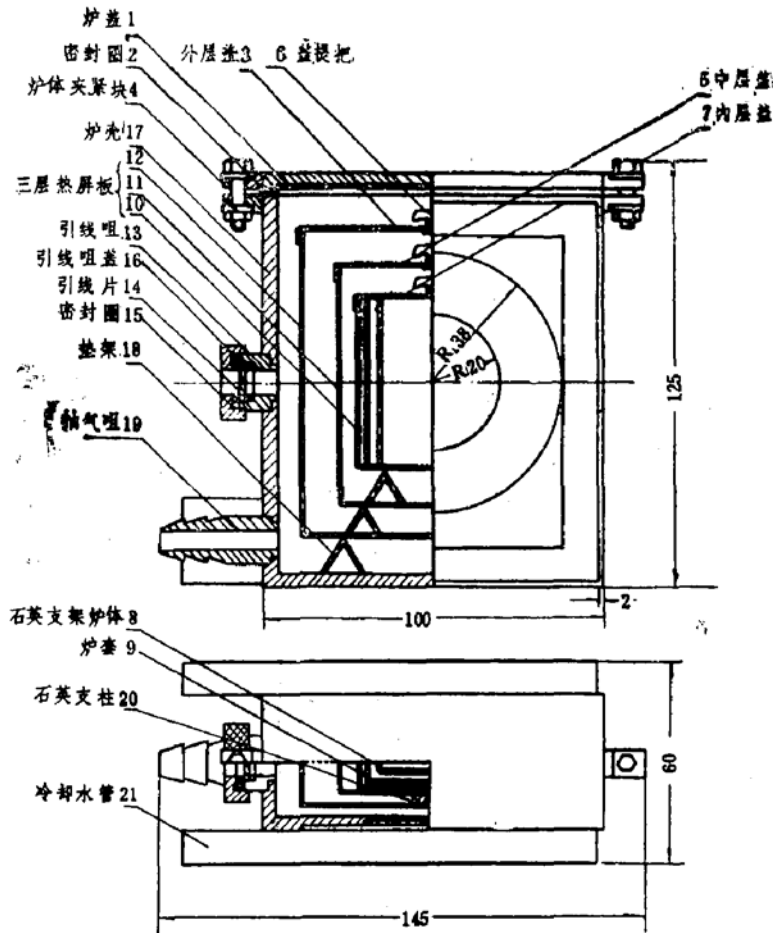


图1. 正电子湮没真空高温加热炉

二、真空加热炉的设计与制作

根据正电子湮没谱仪的具体情况，为了高效率地进行实验，必须要有较高的探测计数率。这就要求正电子源应当较强，探测器的探头应尽量接近正电子源和样品（源的面积约为 $13 \times 13 \text{mm}^2$ ），并且要求尽量减少 γ 射线在样品与探头之间的损失。这些都是设计加热炉时要充分注意的问题。此外，加热炉应有足够高的功率和大的均温区。为防止源及样品的氧化，应是真空加热炉。由于探头紧靠炉壁，为防止探头的温度发生变化而影响计数率，应保证炉壁始终是室温。

根据上述原则，设计的加热炉如图1所示。加热体采取 $\phi = 0.5 \text{mm}$ 的Fe-Cr-Al电热丝绕制成 $\phi = 2 \text{mm}$ 的螺线，缠绕在石英炉架上。炉膛空间为 $32 \times 50 \times 4 \text{mm}^3$ ，炉子的最大功率设计为150瓦。电热丝的最大工作电流为4安培，总电阻值为10欧姆，总长度约为2.5m。炉子采用真空绝热，并装有2~3层厚为0.2mm的不锈钢热屏板。炉壁用黄铜板焊制而成。炉子的总体积为 $125 \times 100 \times 40 \text{mm}^3$ 。炉壁可通水冷却使保持恒温。炉壁开有放置探头的槽口，样品与探头的距离为18mm。炉内装有镍铬合金和镍铝合金组成的热电偶，用以测温。

炉子制成后的测试结果表明，炉子最高温度可达 900°C ，加热到 550°C 时的均温区为 $8 \times 8 \text{mm}^2$ ，内温度偏差 $\pm 1^\circ\text{C}$ 。在炉壁通水冷却的情况下，炉壁温度始终保持室温。将Ge探头直接与炉壁接触。用强度为 $20 \sim 30 \mu\text{Ci}$ 的 ^{22}Na 源对Fe-28at%Ni合金样品进行实验，平均计数率为9个/秒，而在无加热炉时，探头紧接样品测试的计数率为160个/秒。说明炉体对计数率的影响还是相当严重的。用机械泵抽气时，炉子的真空度很容易达到 10^{-2}mm 汞柱，更高的真空度未进行测试。

三、对Fe—28at%Ni合金马氏体转变的实验结果及讨论

1. 实验结果

本文选用Fe—28at%Ni合金样品，进行如下的实验：

a. 样品经 900°C 退火4小时后，测量再加热过程中不同温度下的平均寿命 $\bar{\tau}$ 。对于每一待测温度均保温5小时，温度波动控制在 $\pm 0.5^\circ\text{C}$ 。每次测量寿命谱的累积计数为 $\sim 1.5 \times 10^5$ ，测量结果如图2所示。

b. 样品经 900°C 4小时退火后，再在室温到 -196°C 之间的不同温度下淬火时，测量其Doppler展宽S参数。每次测量累积计数为 $\sim 8 \times 10^5$ ，结果如图3曲线1所示。

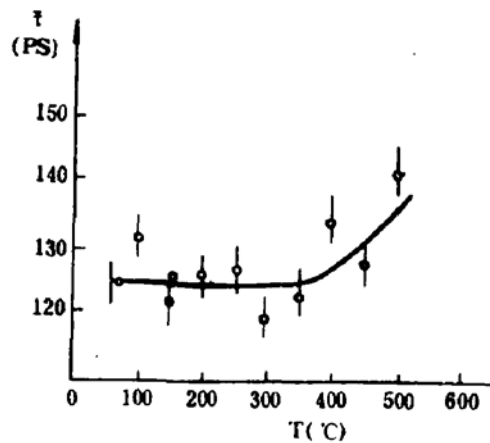


图2. Fe-28at%Ni合金退火后，加热温度与平均寿命 $\bar{\tau}$ 的关系曲线。

c. 样品经 900°C 4小时退火， -196°C 淬火后，再在不同温度下回火半小时，室温

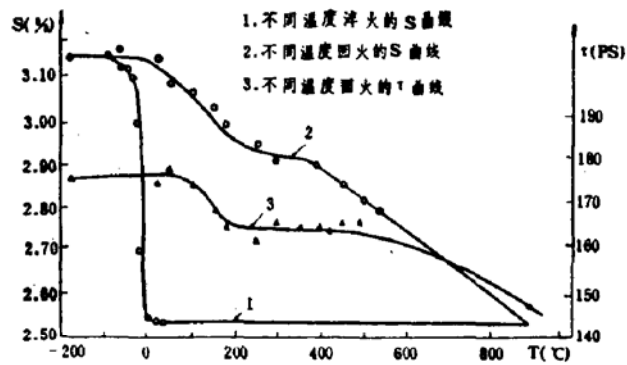


图3. Fe-28at%Ni合金回火温度与S参数和平均寿命 $\bar{\tau}$ 的关系曲线。

下测量其平均寿命 $\bar{\tau}$ 及S参数, 所得结果绘于图3 (曲线2、3)。

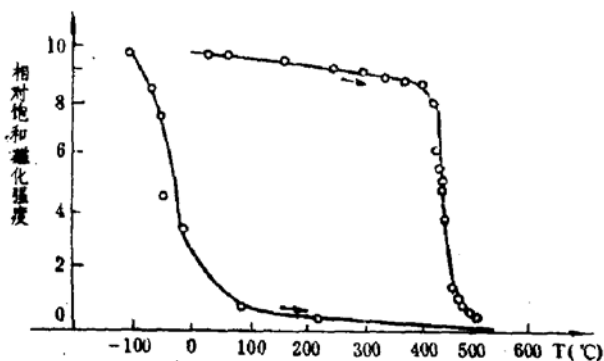


图4. Fe-28at%Ni合金磁饱和与温度的关系曲线。

d. 样品经 900 °C 4 小时退火, -196 °C 淬火后, 用磁称法测量其饱和磁化强度随加热温度的变化曲线, 结果如图 4 所示。

2. 讨论

Fe-Ni合金中的马氏体相变已经进行了广泛的研究, 其中也包括一些用正电子湮没方法的研究, 但仍有很多问题不清楚, 特别是由正电子湮没技术得到的实验结果, 尚存在着明显的矛盾^{[1][2]}。Troev 等人^[1]对 Fe-29.5at%Ni 合金经不同温度回火后测得的平均寿命表明, 正向马氏体转变时, $\bar{\tau}$ 无变化 (M_s 到 M_f 之间 $\bar{\tau}$ 无变化), 而反向转变时, $\bar{\tau}$ 急剧增加, 但Hautojarvi^[2]和何永枢、王欣竹等^[3]对Fe-30at%Ni及 Fe-28.93W%Ni 合金所测得的结果却大不相同。他们认为正向马氏体转变产生大量缺陷, 因而使正电子平均寿命增加。

本实验所得结果与文献[2]、[3]类似。S参数与 $\bar{\tau}$ 的变化形式是一致的, 都反映了合金中缺陷的变化情况。

可以看到, 从900°C淬到室温, S参数及平均寿命没有明显变化, 但继续向低温冷却时, 在-10到-20°C之间处理后, S参数急剧增加, 当接近马氏体转变终了温度 M_f 时, S增加的势头减小, 最后达到一稳定值。S曲线在降温段的变化形式, 反映的正是正向马氏体相变中缺陷浓度的变化情况。马氏体转变的终了温度约为-70°C。这与用磁称法测得

的结果(图4)基本一致。液氮淬火后的样品, 在室温以上等时退火的结果如图3中曲线2、3所示。这与经冷加工后回火的样品相似。由于液氮淬火的样品含有大量缺陷, 在升温过程中, 空位自100°C开始消失, 位错自450°C开始消失, 直至回复到淬火前的原始状态。反向马氏体相变在升温段曲线上没有明显的反映, 这是由于反向马氏体相变发生的温度区间, 正是铁镍合金中位错消失加速进行的区间, 所以反向相变产生的缺陷对正电子寿命及S参数的影响不明显。相变后的升温曲线表明, 正向马氏体相变不但产生了大量的位错, 而且也有不少空位。这种空位可能是位错互相交割等复杂运动造成的。

Fe-28at%Ni 合金在高温退火冷到室温时, 由金相观察及磁称实验已发现有少量马氏体出现, 因而已产生了一定量的缺陷。在加热过程中测得的平均寿命曲线(图2), 正是反映了这些缺陷的消除与其温度下, 热平衡空位的综合效果。

本研究的结果表明, Hautojarvi^[2]的实验结果较为可信。

四、对形变Ni₃Mn合金的实验结果及讨论

1. 实验结果

本实验所用的Ni₃Mn合金含Mn25.9at%·其余为Ni。由于Ni、Mn同属周期表中第四周期3d过渡族元素, 它们的原子散射因子极为接近, 用一般的X射线衍射法很难测得超结构线。因此, 我们以饱和磁感应强度 B_s 作为该合金有序程度的标志, 样品的晶体缺陷以S参数表示。

经过320小时阶梯退火, 我们获得 B_s 和S参数的改变之后, 又对样品进行了420°C等温不同时间的回火, 测量了合金在不同状态时的 B_s 和S参数, 如图5所示, 从而了解形变Ni₃Mn再经有序化时的动力学特点。

a. 有序Ni₃Mn的 B_s 随S的增加基本成直

线下降(见图5),冷锻样品的 B_S 值为450Gs,淬火态的 B_S 为280Gs。从这里可知,只有当形变量极大时,形变造成的无序程度才接近淬火后的。

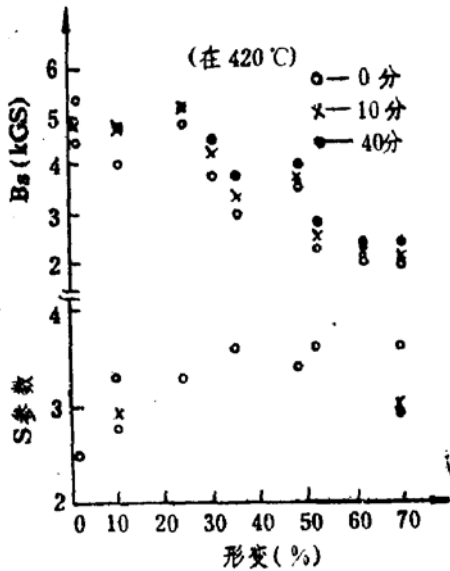


图5. 形变 Ni_3Mn 回火过程中 B_S 、S参数的变化

b. S参数在形变量 $\epsilon < 20\%$ 时变化较为明显,在 $\epsilon > 30\%$ 后达到饱和(见图5)。S参数的饱和说明缺陷浓度增加,射入金属中的正电子全部为缺陷捕获。

c. 形变 Ni_3Mn 在 $420^\circ C$ 回火中的行为很有趣。当形变量较小时, B_S 在回火的最初10分钟内便达到稳定值,而对形变较大的样品, B_S 要在40分钟内才能达到稳定值(见图5)。

d. 在回火过程中S参数的改变与 B_S 有相似之处,即最初10分钟内回复较多,40分钟内回复到一个稳定的数值(见图5)。无论是 B_S ,还是S参数都不能回复到形变之前的水平(在所研究的回火时间范围 ~ 10 小时之内)。

e. 无序样品在 $420^\circ C$ 回火时, B_S 值随时间的延长而持续上升(见表1)。

表1 无序 Ni_3Mn 在回火过程中 B_S 的升高

回火时间(分)	0	10	40	225	290	390
B_S (Gs)	260	320	390	850	920	970

f. 无序态 Ni_3Mn 的Doppler展宽谱较有序态的更宽,峰值稍低(见图6)。另外空位、位错对Doppler展宽谱的线形也有不同的影响。有位错缺陷的样品谱线窄而高(见图6)。

2. 讨论

Ni_3Mn 的 B_S 值随形变量的增加而下降,下降趋势经回归处理拟合为直线。与淬火的作用相比,形变对 Ni_3Mn 铁磁性的影响稍小。这主要是由于形变与淬火对 Ni_3Mn 有序结构的影响机制有所不同:形变以后, Ni_3Mn 合金中位错密度迅速提高,位错的滑移面分割有序畴,造成大量的反相畴界。横跨反相畴界,存在着许多Mn-Mn原子对,它们的反铁磁耦合降低了整个有序相的铁磁性。但是,在被分开的小有序畴内部,还保持着相当高的有序度,因而整个基体还保持着一定的铁磁性。淬火样品的情况与此不同,在高温下,晶格振动的能量远远大于Ni-Mn原子间的结合能,原子无序分布,基体不再具有有序结构,因此也不可能存在铁磁性。

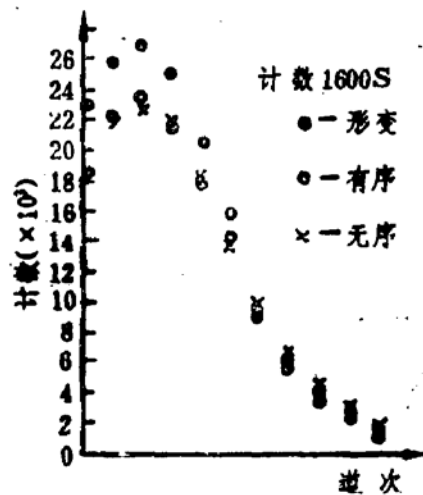


图6. 不同状态的Doppler展宽谱。

从图5看到,在 $420^\circ C$ 保温10分钟后,各样品的 B_S 值有不同程度的提高,保温40分钟后, B_S 上升到稳定值。联系缺陷的回复过程,我们有如下的初步看法:

在回火过程中,位错会重新排列、攀移和互毁,密度降低,一部分点缺陷,例如非

平衡空位，对于位错运动无疑会有帮助。在420℃，点缺陷回复的速度很快，几分钟之内空位的浓度就可能下降到平衡的水平。因此，位错的回复在很大程度上也在这一阶段完成。在回复过程中，位错运动可以形成嵌镶块的边界，同时位错的滑移面就成为有序畴内部的“亚畴”边界。这时影响合金铁磁性的是亚畴界两侧的Mn-Mn原子对。

另外，从图5中还可以看到，形变量越大，Ni₃Mn的铁磁性回复得越慢。我们推测，这是由于形变量增加时，原子排列受到影响造成的。形变量越大，原子排列偏离有序组态越严重，回复过程越缓慢。

正电子湮没S参数的改变能支持上述看法。形变Ni₃Mn的S参数在回火10分钟内，回复~50%，40分钟内，回复~70%，以后S参数不再回复，为一稳定值。

比较图6中的谱线，可知空位对S参数的影响约为4~5%。因此，以上回复过程主

要由位错密度降低造成。S参数之所以不能回复到形变前的数值2.56，是由于位错构成的亚晶界和亚有序畴界在420℃回火中不能回复所造成的，它们对正电子有一定的捕获作用。这也正是磁性实验中B_S不能回复到有序态数值的原因。

参考文献

- (1). T. D. Troev et al, Appl. Phys. 13 (1977) 105
- (2). P. Hautajarvi et al, Proc. 5th Intern. Conf., Positron Annihilation, 1979, P149.
- (3). 何永枢 黄懋容等, 全国第二届正电子湮没谱学学术会议论文集, 1984年, 重庆。“Fe-Ni合金马氏体相变缺陷的正电子湮没研究”。
- (4). Н. Я. Дехтяр, И ДР., ДАН СССР, 147, 6 (1962) 1332
- (5). M. Doyama, J. Phys. Soc. Japan, 36(1974) 1706
- (6). K. Kuribayashi, Sol. Sta. Comm., 17, 2 (1975) 143
- (7). H. Fukushima, J. Phys., (F)6, 10 (1976) 1845