

文章编号: 1007-4627(2017)03-0646-05

# 铁冷轧形变以及热处理对形变缺陷的影响

龚毅豪, 靳硕学, 卢二阳, 况鹏, 朱特, 曹兴忠<sup>†</sup>, 王宝义

(中国科学院高能物理研究所, 北京 100049)

**摘要:** 采用常用冷轧设备对铁进行冷轧引入形变缺陷。研究形变量和温度对形变缺陷的影响。形变样品中的微观缺陷、物相结构和形貌分别使用正电子湮没技术 (PAT)、X 射线衍射仪 (XRD) 和透射电子显微镜 (TEM) 进行表征分析。对经过 673 K 热处理的形变样品前后进行 XRD 测试, 结果显示, 随着形变量的增加, 样品中晶面方向 (200) 具有择优生长趋势, 673 K 热处理后, 择优趋势更加明显, 同时晶粒的尺寸也增大。利用正电子湮没寿命谱和多普勒展宽能谱对样品中形变缺陷的热力学稳定性进行研究, 发现形变引入的空位型缺陷约在 673 K 回复完毕, 723 K 后位错缺陷开始回复。

**关键词:** 铁; 正电子湮没谱学; 冷轧形变; X 射线衍射

**中图分类号:** TG156.9      **文献标志码:** A      **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.34.03.646

## 1 引言

铁以及铁基合金在核结构材料领域中得到了广泛的应用, 以铁基不锈钢为主的诸多材料, 例如 316L, CLAM, Fe9Cr 等铁基不锈钢均作为新一代核反应堆的候选结构材料。核结构材料的工况环境是极其恶劣的, 包括高温高压、高能和高通量的中子辐照<sup>[1-3]</sup>。高能的中子辐照除了嬗变反应产生氢和氦之外, 同时也引入了大量的缺陷。其中位错型缺陷是导致辐照硬化的重要因素<sup>[4]</sup>。众所周知, 材料内部的氢和氦容易沉积在位错缺陷附近, 长时间的积累会导致材料出现裂纹以及脆化<sup>[5]</sup>。同时, 一般的核结构材料都是多晶材料, 取向不同的晶粒之间是由一系列位错按特定的方式排列从而形成晶界<sup>[6]</sup>。位错会引起附近晶格的畸变, 位错的运动导致晶界的迁移和湮没<sup>[7]</sup>。所以对位错的研究就十分有意义, 本文采用对纯铁样品冷轧形变, 使用 X 射线衍射仪 (XRD) 研究不同形变量下晶面取向的演化过程, 使用透射电子显微镜 (TEM) 对形变样品的形貌进行表征, 使用 PAT 研究等时退火热处理过程中位错缺陷的热力学演化, 并对演变过程进行分析讨论。

## 2 实验

实验样品为纯度 99.99% 的多晶铁, 经过线切割及机械抛光后, 制成了尺寸为 10 mm×10 mm×0.4 mm 的试样。为了消除制样过程中样品表面可能产生的附

着物以及样品内部的应力, 首先对样品进行电化学抛光, 再将样品放在高真空 ( $10^{-5}$  Pa) 的环境下进行热处理 (1023 K, 2 h), 随炉冷却后获得充分退火无缺陷的样品。然后使用轧机进行冷轧, 冷轧形变量为 5%, 10%, 20%, 55%, 75%。冷轧过程中, 轧机工作线速度为 0.541 cm/s。冷轧过后, 将样品放在高真空 ( $10^{-5}$  Pa) 的环境下进行热处理 (673 K, 1 h)。对 673 K 热处理前后的样品, 进行寿命谱和多普勒展宽能谱测试, 此外还使用 XRD 测定衍射峰及其半高峰宽, 扫描速率为  $9^\circ/\text{min}$ , Cu 靶  $K\alpha$  射线, 波长为 0.154, 056 nm。然后对形变量为 10% 的样品进行等时退火处理, 温度范围为 423 K~923 K, 保温时长 1 h, 温度间隔为 50 K。每一个温度点都进行正电子湮没寿命谱测试和多普勒展宽能谱测试。

正电子湮没寿命谱用来表征样品内缺陷的成分信息, 多普勒展宽能谱用来表征缺陷附近电子动量的信息。本实验所用正电子湮没谱学的放射源为  $^{22}\text{Na}$ , 活度为  $2\times 10^5$  Bq。正电子湮没寿命谱的时间分辨率为 190 ps, 总计数为  $1\times 10^6$ 。多普勒展宽谱中能量分辨为  $511.0\text{ keV}\pm 1.3\text{ keV}$ , 定义  $S$ ,  $W$  参数用来描述与正电子湮没的电子动量,  $S$  参数定义为低动量区域 ( $0\sim 3.0\times 10^{-3} m_0c$ ,  $m_0$  为电子的静止质量,  $c$  为光速) 计数与总计数比值,  $W$  参数定义为高动量区域 ( $10.0\times 10^{-3} m_0c\sim 23.0\times 10^{-3} m_0c$ ) 计数与总计数比值。

收稿日期: 2016-12-11; 修改日期: 2017-04-15

基金项目: 国家自然科学基金 (11475193, 11575205, 11505192)

作者简介: 龚毅豪 (1989-), 男, 山东菏泽人, 博士研究生, 从事物理学研究; E-mail: gongyh@ihep.ac.cn

<sup>†</sup> 通信作者: 曹兴忠, E-mail: caoxzh@ihep.ac.cn.

### 3 结果与讨论

图 1 为不同形变量下的 Fe 样品以及形变过后 673 K 热处理的 XRD 测试图谱。图谱中出现了  $2\theta$  衍射角分别为 0.781, 1.136, 1.438 rad 的衍射峰, 与 PDF 65-4899 体心立方结构 Fe 中 (110), (200), (211) 衍射峰一致。图 1(a) 中可以看出, 随着形变量的增加 (110) 衍射峰强度逐渐降低, 而 (200) 衍射峰强度显著增加, (211) 衍射峰的变化幅度很小。结果表明, 随着形变量的增加, Fe 形变样品呈现出了 (200) 晶面方向的择优现象。这可能是由于在形变的过程中, 位错在晶界处堆积, 晶界逐渐的弓出, 随着位错的不断赛积, 晶界处位错密度逐步增大。同时在晶界处集中的应力, 使得晶界附近能够形成位错胞, 随着形变量的逐渐增大, 位错胞逐渐

布满整个晶粒, 最终使晶界取向差增大, 完成由 (110) 向 (200) 转变的过程<sup>[8]</sup>。在经过 673 K 热处理后, 这种择优取向的趋势进一步的增加。这是由于在温度的效应下, 晶界附近的原子迁移率提高, 位错也更容易迁移, 使得晶格更加容易的发生转变。另外由谢乐公式<sup>[9]</sup>可以计算在 (200) 方向的晶粒尺寸, 公式如下:

$$D = \frac{0.89\gamma}{B \cos \theta}, \quad (1)$$

$D$  为晶粒的尺寸(单位为 nm),  $B$  为实测样品衍射峰半高宽度(单位为 rad),  $\theta$  为衍射角(单位为 rad),  $\gamma$  为 X 射线波长, 此次试验为 0.154 056 nm。通过上式可以计算出不同形变量下的 (200) 晶面方向晶粒尺寸, 其值列于表 1。

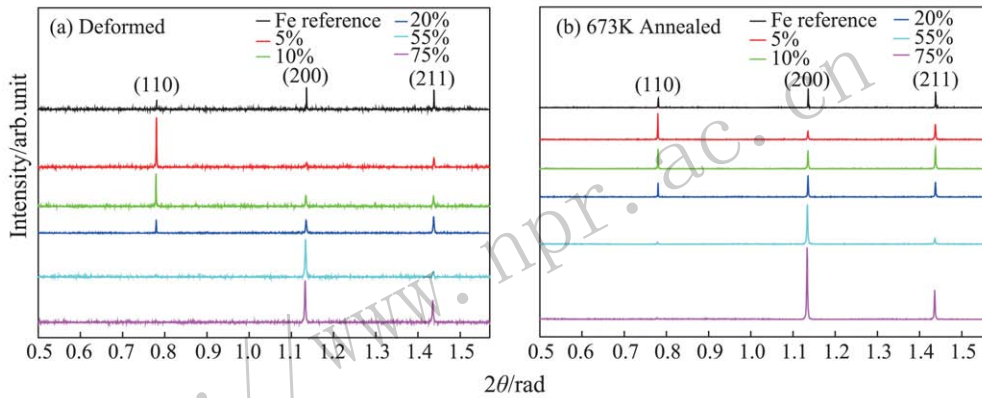


图 1 (在线彩图) 形变铁样品的 XRD 图谱  
(a)形变; (b): 形变后 673 K 热处理。

表 1 不同形变量及退火前后 (200) 晶面方向晶粒的尺寸变化

形变量	形变后晶粒尺寸/nm	673K退火晶粒尺寸/nm
	(200)	(200)
Reference	166.4	
5%	38.8	43.3
10%	39.5	64.7
20%	34.3	62.1
55%	36.0	48.0
75%	36.9	37.2

从表中可以看出, 纯铁中晶粒的初始尺寸在 166 nm, 形变后的晶粒尺寸稳定在 34.3~39.5 nm 之间, 经过 673 K 热处理之后, 晶粒的尺寸开始出现不同程度的增大。这是由于在 673 K 温度时, 空位型缺陷基本回复完毕, 位错型缺陷在此温度在比较容易运动, 同时晶界两侧原子的随机跃迁机制, 在纳米尺度上, 晶粒之间开始出现合并, 使得晶粒开始长大<sup>[10]</sup>。同时对退火前后的样品进行了正电子湮没寿命谱和多普勒展宽能谱测试, 结果如图 2 所示。

冷轧形变在引入位错型缺陷的同时也引入了部分空位型缺陷, 由大量的实验可知正电子在铁基体、位错、单空位的寿命分别为 107, 117, 180 ps<sup>[11]</sup>。正电子容易被具有开空间缺陷捕获而且正电子被捕获的概率与开空间的尺寸呈正比, 实验证明空位型缺陷的开空间尺寸比位错型缺陷的开空间尺寸大<sup>[12]</sup>, 所以正电子更容易被空位型缺陷捕获。在形变样品的正电子湮没寿命谱结果中, 长寿命  $\tau_2$  通常认为是正电子被空位和位错捕获湮没后的复合结果<sup>[13]</sup>。强度  $I_2$  代表正电子在空位和位错复合湮没的概率。多普勒展宽能谱的  $S$  参数表示低能电子的湮没概率,  $S$  参数和强度  $I_2$  都与缺陷的浓度有正相关关系。由图 2 可以看出, 强度  $I_2$  在形变量 20% 后呈现水平趋势, 表明在低形变量 (0%~50%) 区域内, 正电子湮没出现饱和。673 K 热处理后, 结果显示强度  $I_2$  和  $S$  参数都显著下降, 说明此时样品内缺陷浓度有明显的降低。长寿命  $\tau_2$  在低形变量区域显著下降, 认为是空位型缺陷的回复, 导致长寿命  $\tau_2$  中正电子在空位湮没的比重降低而导致的寿命下降。然而对

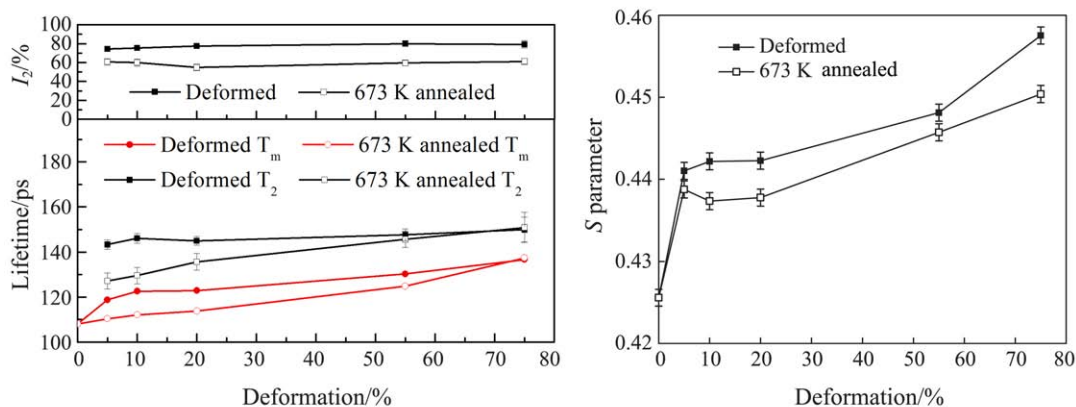


图 2 (在线彩图) 不同形变量下正电子湮没寿命以及多普勒 S 参数变化

于高形变量 (55%和75%) 来说, 长寿命  $\tau_2$  没有明显的变化, 这是由于高形变量下形成更加复杂的位错网络结构, 在一定程度上抑制了位错运动和空位的回复, 也抑制了样品内部晶粒尺寸的长大, 这一结果和 XRD(200) 方向的晶粒尺寸变化相对应。其中可以看出, 退火前后形变量为 10% 的样品, 无论是长寿命、强度以及 S 参数变化还是 (200) 衍射峰的强度上和晶粒尺寸的变化上都是比较明显的。为了研究形变缺陷的热力学演化过程, 采用对形变 10% 的样品进行等时退火实验, 其等时退火的正电子寿命结果如图 3 所示。

由图 3 可以看出, 随着退火温度的增加, 平均寿命  $\tau_m$  逐渐减小, 说明形变引入的缺陷逐渐回复。长寿命  $\tau_2$  在 423~623 K 间先减小后增大, 而强度  $I_2$  一直减小。这是由于形变引入的空位型缺陷在 423 K 时开始迁移回复, 使得长寿命  $\tau_2$  减小。随后空位型缺陷在迁移回复的过程中出现不同程度的合并, 出现空位团簇, 使得正电子被空位团簇捕获后湮没的时间增加。所以长寿命  $\tau_2$  先减小后增加。而由于空位型缺陷的浓度一直在减少, 所以强度  $I_2$  一直呈现下降减少的趋势。623 K 以后, 长寿命  $\tau_2$  一直处于下降的趋势, 而强度  $I_2$  则是先下降后上升趋势, 在 673 K 处, 强度  $I_2$  达到最低, 此时, 表明空位型缺陷及其团簇已经基本回复完毕。由上述所知在 423~673 K 区间, 正电子大多数被空位型缺陷捕获。在 673 K 后, 空位型缺陷基本回复, 而位错型缺陷还保留在基体内。从电镜结果可以看出, 形变后样品引入了大量的位错型缺陷, 在 673 K 热处理后, 大部分的位错型缺陷任然保留在铁基体内。电镜结果如图 4 所示。同时可以看出 673 K 热处理后, 晶粒的尺寸也出现变大的情况。此时, 正电子多数被位错型缺陷捕获, 由于此时位错的密度还在一个比较高的状态下, 所以强

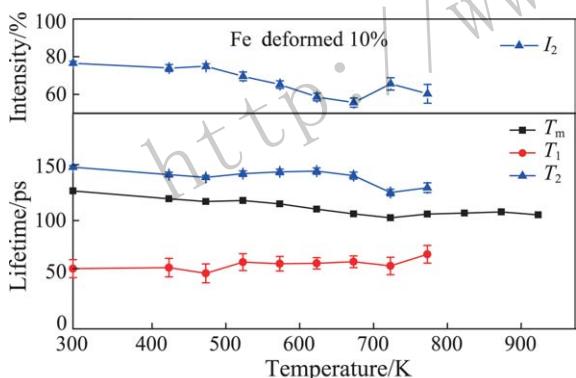


图 3 (在线彩图) 铁形变 10% 样品等时退火的寿命结果

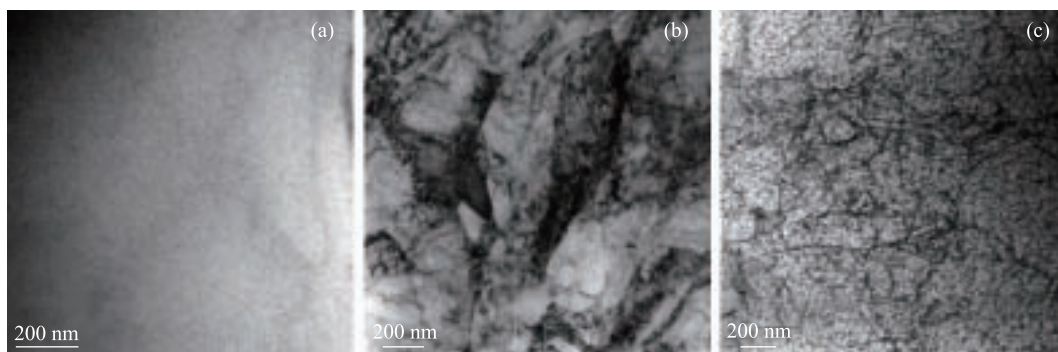


图 4 纯铁 TEM 结果

(a) 完全退火样品; (b) 形变 10%; (c) 形变 10% 后 673 K 热处理。

度  $I_2$  在 673 K 后开始上升。随着温度的继续上升, 723~773 K, 寿命基本无变化, 在 773 K 后, 寿命开始下降, 说明在此温度下位错型缺陷开始回复。

图5为纯铁形变10%等时退火的  $S$  参数和  $S-W$  参数曲线。由图5可以看出,  $S$  参数随着退火温度的升高, 大体呈现逐渐降低的趋势。在 473 K 处  $S$  参数有稍微升高现象, 这表明空位型缺陷的开始长大, 在 723 K 处  $S$  参数开始上升, 然后  $S$  参数开始下降, 与正电子湮没寿命谱相结合可以看出, 此时空位型缺陷基本回复完毕, 位错型缺陷开始回复。从  $S-W$  参数曲线可以看出 293~723 K 大体为一条直线, 在 723 K 出现拐点, 773~923 K 大体为一条直线, 根据缺陷捕获正电子两态捕获模型,  $S$  参数和  $W$  参数分别可以写成下面的关系式<sup>[14]</sup>:

$$S = (1-f)S_b + fS_d, \quad (2)$$

$$W = (1-f)W_b + fW_d. \quad (3)$$

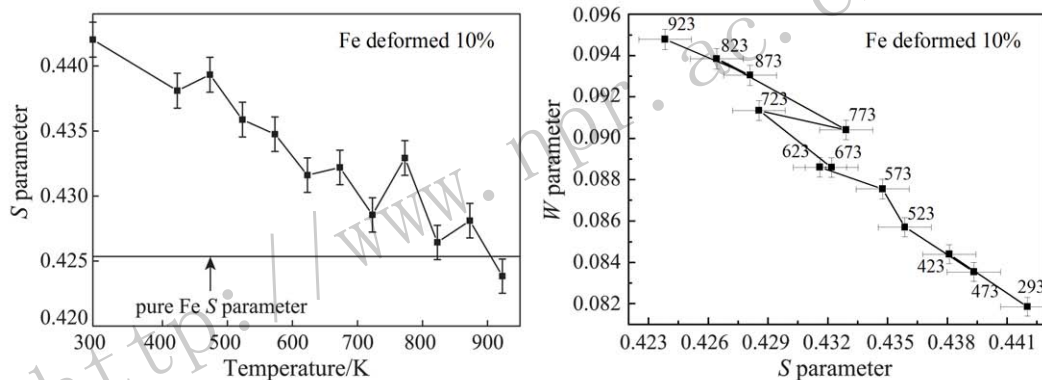


图5 铁形变10%等时退火的  $S$  参数和  $S-W$  参数曲线

## 4 结论

通过对完全退火的铁进行冷轧形变, 引入形变缺陷的同时, 也造成了晶界的破碎。XRD结果显示, 随着形变量的增加, (110)衍射峰减弱, (200)衍射峰增强, (200)晶面方向出现择优取向。673 K 热处理后, 促进 (200) 晶面方向的择优取向并且晶粒尺寸开始长大。此外, 高形变量下形成的复杂缺陷结构对晶粒的长大起到一定的抑制作用。正电子湮没谱学结果显示, 形变引入的空位型缺陷在湮没回复过程中会迁移聚集形成空位团簇, 大部分的空位型缺陷在 673 K 处回复完毕, 723 K 后, 位错型缺陷开始回复。

### 参考文献:

- [1] BLOOM E E. Nucl Mater, 1998, **258**: 7.
- [2] ZINKLE S J. Fusion Eng Des, 2005, **74**: 31.

由 (2) 和 (3) 推导出:

$$S = R \cdot (W - W_b) + S_b, \quad (4)$$

其中  $S_d$ ,  $S_b$  分别为缺陷态和体态的  $S$  参数;  $W_d$ ,  $W_b$  分别为缺陷态和体态的  $W$  参数。式 (4) 中的  $R$  为

$$R = \frac{(S_d - S_b)}{(W_d - W_b)}, \quad (5)$$

可以看出  $R$  只与缺陷的种类有关, 与缺陷的浓度没有关系, 如果  $S-W$  曲线出现转折, 则暗示着正电子湮没机制发生了改变, 即捕获正电子的缺陷种类发生了改变。所以从图5中, 可以得出, 在 723 K 前后, 正电子的主要捕获态发生了转变, 结合正电子湮没寿命谱可以得出, 723 K 之前, 正电子主要湮没在空位型缺陷处, 723 K 后, 正电子则主要湮没在位错型缺陷处。

- [3] EHRLICH K, BLOOM E E, KONDO T. Nucl Mater, 2000, **283**: 79.
- [4] XIAO Xiazhi, SONG Dingkun, XUE Jiangming, *et al.* Advances in Mechanics, 2015, **45**: 141. (in Chinese)  
(肖厦子, 宋定坤, 楚海建, 等. 力学进展, 2015, **45**: 141.)
- [5] LI Zhengcao, CHEN Liang. Acta Metallurgica sinica, 2014, **50**: 1285. (in Chinese)  
(李正操, 陈良. 金属学报, 2014, **50**: 1285.)
- [6] GAO Yingjun, LU Chengjian, HUANG Lilin, *et al.* Acta Metallurgica sinica, 2014, **50**: 110. (in Chinese)  
(高英俊, 卢成健, 黄礼琳, 等. 金属学报, 2014, **50**: 110.)
- [7] GAO Yingjun, LU Chengjian, LUO Zhirong, *et al.* Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2014, **24**: 2073. (in Chinese)  
(高英俊, 卢成健, 罗志荣, 等. 中国有色金属学报, 2014, **24**: 2073.)
- [8] CHEN Xianhua, WANG Xiaolong, ZHANG Zhihua. Ordnance Material Science and Engineering, 2013, **36**: 148. (in Chinese)  
(陈先华, 汪小龙, 张志华. 兵器材料科学与工程, 2013, **36**:

- 148.)
- [9] VENKATARAJU C, SATHISHKUMAR G, SIVAKUMAR K. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. 2010, **230**: 233.
- [10] HELFEN L, WU D T, BIRRINGER R, *et al.* *Acta Mater*, 2003, **51**: 2743.
- [11] KURAMOTO T T E, UENO K, OHMURA M, *et al.* *Computational Materials Science*, 1999, **14**: 28.
- [12] OHKUBO H, TANG Z, NAGAI Y, *et al.* *Mat Sci Eng: A*, 2003, **35**: 95.
- [13] SATO K, YOSHIIE T, ISHIZAKI T, *et al.* *Phys Rev B*, 2007, **75**: 094109.
- [14] MANTL S, TRIFTSHAUSER W. *Phys Rev B*, 1978, **17**: 1645.

## Effect of Deformation and Heat-treatment on Deformation-induced Defects in Iron

GONG Yihao, JIN Shuoxue, LU Eryang, KUANG Peng, ZHU Te, CAO Xingzhong<sup>†</sup>, WANG Baoyi

(*Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

**Abstract:** The pure iron was cold rolled with the thickness reduction from 0% to 75%. The microstructure defects, crystallographic structure and morphology of deformed specimens were characterized by positron annihilation technique (PAT), X-ray diffraction (XRD) and transmission electron microscopy (TEM). The XRD results show that the intensity of (200) increased with increasing deformation, 673 K heat-treatment promote the preference of (200) and the grain size of (200) was increased. The PAT results show that the vacancy type defect was annihilated at 673 K and the dislocation type defects start to annihilate at 723 K.

**Key words:** iron; positron annihilation; cold rolling; X-ray diffraction

Received date: 11 Dec. 2016; Revised date: 15 Apr. 2017

Foundation item: National Natural Science Foundation of China(11475193, 11575205, 11505192)

<sup>†</sup> Corresponding author: CAO Xingzhong, E-mail: [caoxzh@ihep.ac.cn](mailto:caoxzh@ihep.ac.cn).