

快凝 Al-Fe-V-Si-Mm 合金中稀土作用的正电子湮没研究 *

贾 威¹⁾ 熊良钺²⁾ 曾梅光¹⁾ 王建强¹⁾

1) 东北大学理学院材料科学系, 沈阳 110006

2) 中国科学院沈阳金属所国际材料物理中心, 沈阳 110015

摘 要 测量了几种不同混合稀土 (Mm: Misch Metal) 含量的快凝 Al-Fe-V-Si-Mm 合金薄带的正电子寿命谱, 并分析了这些快凝合金薄带中稀土含量对正电子寿命的影响.

关键词 正电子湮没, 混合稀土 (Mm), Al-Fe-V-Si 合金

中图法分类号 TG111

POSITRON ANNIHILATION STUDY ON THE EFFECT OF MISCH METAL IN Al-Fe-V-Si-Mm ALLOYS

JIA Wei¹⁾, XIONG Liangyue²⁾, ZENG Meiguang¹⁾, WANG Jianqiang¹⁾

1) Department of Materials Science, College of Science, Northeastern University, Shenyang 110006

2) International Center for Materials Physics, Institute of Metal Research, The Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110015

Correspondent: XIONG Liangyue, professor, Tel: (024)3843531-55536, E-mail: zqsum@imr.ac.cn

Manuscript received 1997-01-29, in revised form 1997-05-27

ABSTRACT The positron lifetime spectra of several Al-Fe-V-Si-Mm alloys with different content of Misch metal was measured, and the effect of the amount of Misch metal on the positron lifetime in Al-Fe-V-Si-Mm alloys was discussed.

KEY WORDS positron annihilation, Misch metal(Mm), Al-Fe-V-Si alloy

弥散强化 Al-Fe-V-Si 合金具有优异的室温和高温强度、低的强化相颗粒粗化率, 因此, 这种合金受到很大关注, 并取得很多研究成果^[1,2]. X 射线能谱分析表明: 在 Al-Fe-V-Si 合金中, 析出相为 bcc α -Al₁₃(Fe,V)₃Si, 其尺寸为纳米量级, 而 Al 基体晶粒尺寸为微米量级. 在弥散强化 Al-Fe-V-Si 合金的基础上加入微量混合稀土 Mm 后基体 Al 晶粒和第二相粒子尺寸呈下降趋势, 晶粒与弥散第二相粒子尺寸均处于纳米范围 (<100 nm), 形成了颗粒弥散纳米合金^[3]. 快凝 Al_{92.8}Fe_{4.3}V_{0.7}Si_{1.7}Mm_{0.5} 合金中存在 Al₁₃(Fe,V)₃Si 和 Al₈Fe₄Mm 两种纳米粒子; 快凝 Al_{92.3}Fe_{4.3}V_{0.7}Si_{1.7}Mm_{1.0} 合金中仅存在 Al₈Fe₄Mm 一种纳米粒子; 快凝 Al_{90.3}Fe_{4.3}V_{0.7}Si_{1.7}Mm_{3.0} 合金中也只存在 Al₂₀Fe₅Mm 一种纳米粒子; 当稀土含量达到 6.0% 时, 出现 Al_{87.3}Fe_{4.3}V_{0.7}Si_{1.7}Mm₆

* 国家自然科学基金 59471012 和东北大学理学院青年科学基金资助项目
收到初稿日期: 1997-01-29, 收到修改稿日期: 1997-05-27

非晶合金, 由此可以看出: 随着稀土含量增加, 弥散 bcc α - $\text{Al}_{13}(\text{Fe}, \text{V})_3\text{Si}$ 相被抑制析出, 而基体合金则向非晶态转变. 因此, 有必要研究快凝 Al-Fe-V-Si-Mm 合金中随稀土含量增加而产生的结构变化. 本文采用正电子湮没技术对这种变化进行研究.

1 实验方法与结果

1.1 实验方法

快凝 $\text{Al}_{93.3-x}\text{Fe}_{4.3}\text{V}_{0.7}\text{Si}_{1.7}\text{Mm}_x$ ($x=0, 0.5, 1.0, 3.0, 6.0$, 原子分数, 下同) 合金是将真空感应熔炼的母合金, 通过熔体单辊急冷法得到的合金薄带, 冷速达到 10^6 K/s. 薄带尺寸为 10—14 mm 宽, 0.03—0.05 mm 厚. 正电子寿命谱采用 ORTEC 公司的快—快符合寿命谱仪测量, 仪器分辨函数为 240 ps. 每对样品测量 6 次寿命谱, 每次测量总计数超过 10^6 . 采用 PATFIT 程序^[4]解谱, 寿命谱特征参数取各解谱结果的平均值.

1.2 三寿命组分拟合结果

表 1 中列出不同稀土含量快凝 Al-Fe-V-Si-Mm 合金中正电子寿命三组分自由拟合结果, 其中 $\bar{\tau}=I_1\tau_1+I_2\tau_2+I_3\tau_3$. 从表中可以看出: τ_2 值在误差范围内可视为相等, 其平均值为 (327.4 ± 10.0) ps. 为了考察其强度 I_2 的变化并降低偏差, 固定 $\tau_2=327.4$ ps, 重新解谱, 结果列于表 2.

表 1 急冷态 Al-Fe-V-Si-Mm 合金薄带正电子寿命三组分自由拟合结果

Table 1 Fitting results of three components of positron lifetime for Al-Fe-V-Si-Mm alloys

Mm, %	τ_1 , ps	τ_2 , ps	τ_3 , ps	I_1 , %	I_2 , %	I_3 , %	$\bar{\tau}$, ps
0	191.6±7.8	334.9±11.0	1976.8±20.1	56.1±5.1	37.4±5.0	6.5±0.1	361.7±1.2
0.5	191.4±8.3	329.1±23.3	1926.5±46.6	58.5±8.8	35.8±8.7	5.7±0.1	338.7±2.0
1.0	199.8±9.5	332.8±24.3	1994.6±57.6	65.0±8.8	31.4±8.6	3.6±0.2	303.2±2.0
3.0	200.5±8.9	312.8±22.8	2008.3±63.4	63.3±9.9	34.2±9.8	2.5±0.1	283.3±1.9

表 2 固定 $\tau_2=327.4$ ps 后试样正电子寿命谱特征参数

Table 2 Parameters of positron lifetime spectra with $\tau_2=327.4$ ps

Mm, %	τ_1 , ps	τ_3 , ps	I_1 , %	I_2 , %	I_3 , %	$\bar{\tau}$, ps
0	188.1±3.5	1969.6±21.7	53.2±0.9	40.3±0.9	6.6±0.1	361.4±1.9
0.5	192.6±3.5	1926.3±31.3	59.3±1.7	35.1±1.8	5.7±0.1	338.7±1.6
1.0	201.5±2.0	1982.2±28.2	67.0±1.7	29.4±1.7	3.6±0.1	303.0±1.3
3.0	207.5±3.0	2040.3±60.6	71.7±1.7	25.8±1.7	2.5±0.1	283.8±1.2

1.3 非晶样品正电子寿命拟合结果

一般认为非晶合金只有单一正电子寿命组分^[5-7], 即只有短寿命. 但 $\text{Al}_{87.3}\text{Fe}_{4.3}\text{V}_{0.7}\text{Si}_{1.7}\text{Mm}_6$ 非晶合金中存在三种短程序^[8], 应该有三个寿命组分与之对应, 而四寿命组分拟合结果不合理; 三寿命组分拟合结果中有一个长寿命, 也得不到与三个短寿命对应的三个寿命组分, 因此, 采用两寿命组分拟合 (而且其结果偏差最小), 拟合结果列于表 3 中.

表 3 Al_{87.3}Fe_{4.3}V_{0.7}Si_{1.7}Mm₆ 非晶合金正电子寿命自由拟合结果
Table 3 Positron lifetime results for Al_{87.3}Fe_{4.3}V_{0.7}Si_{1.7}Mm₆ amorphous alloy

Mm, %	τ_1 , ps	τ_2 , ps	I_1 , %	I_2 , %	$\bar{\tau}$, ps
6.0	244±1.7	1611.7±23.8	94.7±0.1	5.3±0.1	315.9±1.6

2 分析与讨论

2.1 纳米材料的正电子寿命

为了分析比较方便起见, 在表 4 中列出这一类纳米材料正电子寿命谱特征参数, 其中 Ni-P, Fe-Si-B, Fe-Mo-Si-B 为非晶晶化法制备的纳米材料, 数据引自卢柯的总结性文章^[9], Al_{92.3}Fe_{4.3}V_{0.7}Si_{1.7}Mm_{1.0} 纳米合金为本工作测量结果. 我们将正电子寿命三个组分分别称为短寿命、中间寿命与长寿命, 可以看出: 纳米材料的正电子寿命明显大于完整晶体中自由态寿命 ($\tau_f^{\text{Ni}}=110$ ps, $\tau_f^{\text{Fe}}=106$ ps)^[9], 而且短寿命组分 τ_1 也明显大于自由态寿命而小于单空位寿命是由于正电子局域并湮没于尺寸小于单空位的自由体积的界面缺陷中的结果. 另外, 中间寿命组分 τ_2 对应于尺寸约为 10—15 个空位的纳米空位团. 快凝 Al-Fe-V-Si-Mm 纳米合金薄带中的短寿命 τ_1 均长于纯 Al 中的自由态寿命 ($\tau_f^{\text{Al}}=166$ ps)^[10], 而低于正电子在纯 Al 单空位中寿命 ($\tau_{1V}^{\text{Al}}=239$ ps)^[10], 这意味着 τ_1 的确对应于一种缺陷, 且其尺寸小于单空位, 一般认为是小于单空位的自由体积型缺陷, 中间寿命对应的是纳米空位团型缺陷. 从表 4 中可明显看出: 与其他纳米合金相比, 其单空位自由体积型缺陷比例小, 而纳米空位团型缺陷比例大.

从表 2 中可以发现: 长寿命 τ_3 的强度 I_3 都大于 0.02. 一般认为 τ_3 是叠合薄带之间形成的正电子素产生的, 其强度 I_3 应小于 0.02^[5,6], 而本实验样品的长寿命 τ_3 的强度 I_3 均超过 0.02, 一定有其它因素的贡献^[11]. 由扫描电镜观察发现: 用砂纸打磨后的薄带表面存在快凝过程留下的收缩条纹, 因此有理由推测: 薄带中存在快凝过程中收缩产生的极少量空洞, 在空洞的内表面可形成正电子素. 尽管, 在透射电镜观察中未发现空洞存在, 这可能是由于空洞很少, 且分布很分散的缘故.

表 4 纳米材料正电子寿命谱特征参数比较

Table 4 Comparison of the parameters of positron lifetime for nanocrystalline materials

Sample	τ_1 , ps	τ_2 , ps	τ_3 , ps	I_1 , %	I_1/I_2	I_3 , %
Ni-P	152.3±1.3	350±20	1470±96	94.4±1.3	21.0	1.1±0.1
Fe-Si-B	145.5±1.4	376±23	1845±41	89.5±0.9	11.3	2.5±0.8
Fe-Mo-Si-B	139.4±1.5	240±12	1582±42	90.3±1.0	10.7	1.2±0.1
Al _{92.3} Fe _{4.3} V _{0.7} Si _{1.7} Mm _{1.0}	199.8±9.5	333±24	1995±58	65.0±8.8	2.1	3.6±0.2

2.2 稀土含量对正电子寿命谱的影响

从表 2 中可以看出: τ_1 值随稀土含量的增加而逐渐升高, 同时 I_1 也逐渐增大, 表明随稀土含量的增加, 合金中自由体积型缺陷增大且其数量也增多; τ_2 值保持不变, 而 I_2 值则随稀土

含量的增加而逐渐减小, 表明随稀土含量的增加, 合金中纳米空位团型缺陷尺寸不变, 而数量却在减少; 平均寿命 τ 随稀土含量增加而减小, 表明虽然稀土含量的增加使晶粒进一步细化, 但由于稀土与缺陷之间的交互作用, 稀土填充到空位型缺陷内, 引起平均寿命的下降. 长寿命 τ_3 随稀土含量升高无明显变化, 但其强度 I_3 则随稀土含量的增加而减小, 这也反映出稀土对缺陷有填充作用.

2.3 非晶正电子寿命

一般认为: 非晶合金中的正电子全部被尺寸小于单空位的自由体积捕获. 表 3 中短寿命接近 Al 中单空位正电子寿命, 而 $\text{Al}_{87.3}\text{Fe}_{4.3}\text{V}_{0.7}\text{Si}_{1.7}\text{Mm}_6$ 非晶合金正电子寿命是由三种短程序共同产生的平均效果, 因此这种自由体积接近于纯 Al 中的单空位. 其长寿命强度值大于 0.02, 同样是薄带表面形成的正电子素和内部空洞形成的正电子素共同产生的.

3 结 论

(1) 与其他非晶晶化法制备的纳米材料相比: 快凝 Al-Fe-V-Si-Mm 合金薄带中, 也存在三类界面缺陷, 但单空位自由体积型缺陷相对较少, 纳米空位团型缺陷比例相对较大, 并且在其内部存在极少量由于快凝过程中收缩而产生的空洞.

(2) 随稀土含量的增加, 纳米晶界面中主要的缺陷——单空位自由体积型缺陷的尺寸增大, 数量也增多; 而纳米空位团型缺陷尺寸不变, 但数量明显减少; 薄带内部空洞数量也随之减少.

(3) 在快凝 Al-Fe-V-Si-Mm 合金薄带中, 正电子平均寿命 τ 随稀土含量的变化与稀土原子对空位型缺陷的填充有关.

参 考 文 献

- 1 Davis L A, Das S K, Li J C M, Zedalis M S. *Inter J Rapid Solidifi*, 1994; 8: 110
- 2 Das S K and Froes F H. In: Liebermain H H ed., *Rapidly Solidified Alloys*, Marcel Dekker Inc, 1993: 339
- 3 曾梅光, 王建强, 钱存富, 张宝金, 陈秀芳. 94 秋季中国材料讨论会文集, 1994; 12: 660
(Zeng M G, Wang J Q, Qian C F, Zhang B J, Chen X F. '94 C-MRS Materials Conference Proceedings, 1994; 12: 660)
- 4 Kirgarrd P, Eldtup M, Mogensen O E, Peterson N. *Comput Phys Commun*, 1981; 23: 307
- 5 Sui M L, Xiong L Y, Deng W, Lu K, Patu S, He Y Z. *J Appl Phys*, 1991; 69: 4451
- 6 Sui M L, Lu K, Deng W, Xiong L Y, Patu S, He Y Z. *Phys Rev*, 1991; 44B: 6466
- 7 Liu X D, Wang J T, Zhu J. *J Mater Sci*, 1994; 29: 929
- 8 Wang J Q, Chao Y S, Zeng M G, Zhang B J, Chen X F. *J Rare Earth*, 1996; 14: 201
- 9 Lu K. *Mater Sci Eng*, 1996; R16: 161
- 10 MacKenzie I K. In: Brandt W, Dupasquier A eds., *Positron Solid-state Physics*, North-Holland Publishing Co, 1983: 200
- 11 Schaefer H E, Wurschum R, Birringer R, Gleiter H. *Phys Rev*, 1988; 38B: 9545