

正电子湮没技术作为材料无损检测的应用研究

曾 辉¹ 陈志强¹ 姜 静¹ 薛旭东¹ 梁建平² 刘向兵³ 王荣山³ 吴奕初¹

1 (武汉大学物理科学与技术学院 湖北省核固体物理重点实验室 湖北 430072)

2 (中国科学院上海应用物理研究所 嘉定园区 上海 201800)

3 (苏州热工研究院有限公司 江苏 215004)

摘要 利用正电子湮没技术对材料内部原子尺度缺陷和损伤十分敏感的特点,设计了一种新的正电子无损检测(Non-destructive testing, NDT)装置,并使用单一样品分析了形变及辐照损伤材料的缺陷状态,证实该测量系统的可行性和可靠性。正电子 NDT 有望真正从原子尺度上给出材料损伤的判据,比常用的宏观或微观损伤判据更灵敏,可方便、快速及高灵敏探测两维缺陷分布。

关键词 正电子湮没,无损检测(Non-destructive testing, NDT),缺陷

中图分类号 TL99, TG115.28

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2014.hjs.37.060203

随着现代工业和科学技术的发展,无损检测技术(Non-destructive testing, NDT)已经越来越重要。大多数机械损伤都开始伴随着材料的微结构变化,一般情况下,材料的机械性能与其内部的原子缺陷结构密切相关,如在辐照、疲劳时真实原子结构的变化早于宏观性能的变化。因此很有必要了解材料的真实结构,特别是探测材料损伤的早期阶段。然而,目前国内外大多采用超声波、声发射检测、工业CT、激光全息摄影、射线和渗透与磁法检测等^[1],这些方法的固有局限性在于出现亚毫米级以上的缺陷才可以检测出。正电子湮没无损检测技术在材料机械性能发生变化之前就能探测到其微结构的变化,是研究材料缺陷和电子结构的重要手段^[2]。检测原子尺寸缺陷是正电子湮没技术的特长,对于材料的微结构表征是一个非常灵敏的工具,一般的NDT方法是无法与之相比的,因而它对设备的维护、安全和稳定性都是非常重要的。

目前常规多普勒展宽和正电子寿命谱仪都是采用“三明治式”夹心结构,即用两片相同的样品将放射源夹住进行测量,所以在很大程度上限制了它的工业应用。因而如何对传统仪器进行改进,特别是如何实现单样品的测量,用于材料缺陷的工业NDT应用,一直是人们十分关注的问题。一些作者做了相关的工作,如早期 Hutching 等^[3]研究小组分别研制出适用于材料 NDT 的多普勒展宽谱分析系统,该系统可用于探测材料的拉伸、弯曲、疲劳

等引起的形变和损伤。吴奕初等^[4]也曾建立多普勒展宽谱仪与慢拉伸仪联合的 NDT 装置,实现了多普勒展宽谱的原位测量。王宝义等^[5]发展了 $\beta^+ - \gamma$ 符合正电子寿命谱仪, Somiewki 等^[6-7]初步研究也指出寿命谱可作为 NDT 的一个新方法。最近,日本 Yamawaki 等^[8]发展了一种新的正电子寿命测量仪,采用巧妙设计,将正电子源直接滴在闪烁体上,通过添加正电子探测器,用反符合方式剔除掉无用的 γ 射线信号实现单样品的 NDT 测量,但该设备硬件上要求较高。另外,一些作者用光致正电子湮没技术(Photon Induced Positron Annihilation, PIPA)来实现材料的正电子无损检测^[9-11],但该技术需要加速器等昂贵实验设备,技术相对不成熟。本文探讨如何改进传统测量装置实现单样品测量,并验证了该方法的可行性及可靠性,可望用于实际材料的 NDT。

1 实验

1.1 实验装置

为实现正电子寿命(或多普勒展宽)的 NDT 测量,设计如图 1 所示的测量装置,该装置由三个部分组成:探测系统、移动系统和控制系统。

探测系统和传统的正电子寿命谱测量系统类似^[2],包括两个 γ 射线探测器,两个恒比定时甄别器和一个时间幅度转换器等。 γ 射线探测器中的闪

国家自然科学基金(No.11175136、No.51071111、No.J1210061)、武汉大学自主科研项目和苏州热工研究院有限公司技术开发项目资助

第一作者:曾辉,男,1987年出生,2011年毕业于洛阳师范学院,现为武汉大学物理科学与技术学院硕士研究生

通讯作者:吴奕初, E-mail: ycwu@whu.edu.cn

收稿日期:2013-12-23,修回日期:2014-02-18

烁体采用时间响应特性好的 BaF₂ 闪烁体, 响应的光电倍增管选用时间响应快的 XP2020Q。实验时, 调节恒比定时甄别器的能窗, 使探头分别记录同一个正电子所发出的起始和终止信号即 1.28 MeV 和 0.511 MeV 的光子, 时间幅度转换器再将这两个信号之间的时间间隔转换为一个高度与之成正比的脉冲信号输入多道分析器得到正电子寿命谱。

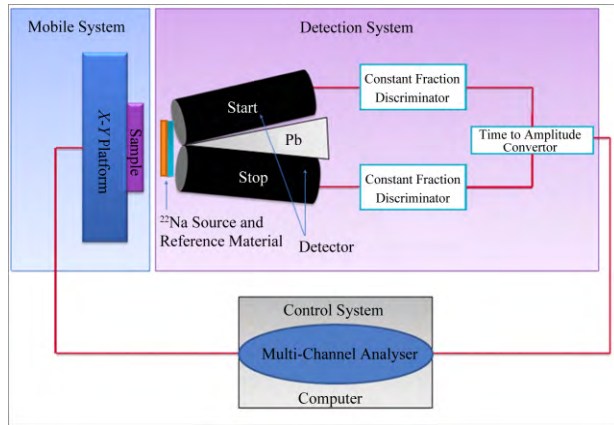


图 1 改进的正电子寿命无损检测装置
Fig.1 Modified positron lifetime spectrometer for non-destructive testing.

移动系统包括超薄型二维电控平移台、剪式升降台(手动移动平台)和待测样品。工作时, 待测样品固定在二维电控平移台上, 通过计算机来控制二维电控平移台的移动速度、距离以及轨迹等, 从而实现待测样品的二维探测。

控制系统包括计算机和电控箱。电控箱软件可以控制二维电动平台, 而原有的计算机软件可以控制寿命谱数据收集, 结合二者的控制软件, 可以实现计算机同步控制二维电控平台和寿命谱测量。

类似于图 1 的设计, 采用高纯 Ge 探测器代替两个 γ 射线探测器, 可搭建多普勒展宽谱的 NDT 测量系统。

1.2 实验样品

实验采用高纯铁和 Hastelloy 合金辐照样品。纯铁样品从合肥科晶购买, 纯度为 99.99% 铁样品, 主要杂质为 0.0015% C、0.001% Ca。样品的尺寸为 10 mm × 10 mm × 1 mm, 样品用水磨砂纸将试样表面磨平(从 150# 到 1200#); 真空退火处理: 真空度为 10⁻³ Pa, 加温至 850 °C, 保温 15 min, 炉冷至室温; 然后电解抛光, 抛光液为饱和磷酸铬酐, 电流密度为 1 A·cm⁻², 时间为 5 min。部分退火样品进行冷轧处理, 冷轧变形量为 33%, 作为冷轧铁样品。

Hastelloy 合金属于高耐腐蚀性能合金, 具有优秀的高温强度、良好的力学性能和物理性能, 在很

多介质中甚至强腐蚀介质中都具有很高的耐腐蚀性。由于化学工业中的反应过程, 其参数(温度、压力、介质浓度)的强化; 介质强腐蚀性的场合越来越多; 腐蚀条件变得更加苛刻。这些因素都促使具有高耐腐蚀性能的 Hastelloy 合金在各种高温、腐蚀环境(如航空汽轮机、工业炉部件、石油化学炉、高温气体冷却核反应堆)中越来越广泛地得到应用。本文中使用 Hastelloy 合金样品为国产 Ni-Mo 合金, 具体良好抗蚀性和熔盐环境中的耐中子辐照性, 合金材料用于构成钚基熔盐堆的堆芯容器和回路, 该合金主要成分为: 16.6% Mo、7.09% Cr、3.83% Fe 和 0.52% Mn。室温下用 132 MeV 的 Ni¹⁰⁺ 离子辐照, 辐照峰值剂量分别为 0.5 dpa、1 dpa、3 dpa, 离子辐照流强为 300 nA, 离子束的直径为 \varnothing 8 mm, 辐照深度约 10 μ m。实验时采用未辐照样品两片、辐照峰值剂量分别为 0.5 dpa、1 dpa、3 dpa 样品各一片。

1.3 测试方法

在测量寿命谱时, 强度为 7.4 × 10⁵ Bq 的 ²²Na 放射源两边不是同时放两片相同的退火铁或者冷轧铁, 而是一边为单片的退火铁, 一边为单片的冷轧铁(以下称之为混合铁), 然后在解谱过程扣除掉退火铁(作为参考样品)的贡献, 那么所得的结果应该和 ²²Na 放射源两边放相同的冷轧铁的结果相同。然后我们在实际过程中就可以寻求一个标准的参考样品(例如退火铁), 固定参考样品和放射源, 测量不同的待测样品, 通过这种解谱扣除参考样品的方法实现单样品的测量。

多普勒展宽利用高能量分辨率的高纯 Ge 半导体探测器进行测量。²²Na 放射源、参考样品材料和待测样品放置方式如图 1, 511 keV 处能量分辨率约为 1.5 keV。用 *S* 参数来分析多普勒展宽谱的变化^[2], *S* 参数反映了低动量电子即价电子或传导电子的动量信息, 当正电子被缺陷捕获时, 由于与高动量芯电子湮没的概率减小, *S* 参数将增加。

正电子寿命谱仪的时间分辨率约 280 ps, 每个谱总的计数为 2 × 10⁶。源-样品放置方式与多普勒测量相同。正电子在源成分的贡献为: 363 ps 对应强度 16.2% 以及 990 ps 对应强度 0.92%。正电子寿命谱采用 LT9 程序拟合分析。

2 实验结果及讨论

2.1 退火铁和冷轧铁结果比较分析

对退火铁、冷轧铁和混合铁样品分别用此无损检测装置做多普勒展宽和正电子寿命谱实验, 其中,

测量混合铁时，将单片退火铁作为参考样品材料，单片冷轧铁作为待测样品。解谱结果如表 1，退火铁的正电子寿命 τ_1 和 τ_2 分别为 108 ps 和 380 ps，对应正电子在完整态和空位团中的湮没，冷轧铁的正电子寿命 τ_1 和 τ_2 分别为 124 ps 和 343 ps， τ_1 增加包含正电子在单空位和位错中的湮没，这与文献

报道结果基本一致^[12-14]。混合铁（未扣除退火铁的贡献）的 S 参数及正电子寿命参数结果都介于纯铁和冷轧铁的参数之间；而混合铁（扣除了退火铁的贡献）和冷轧铁的 S 参数及正电子寿命参数在误差范围内是相同的，这证实了解谱中扣除掉参考样品实现单样品测量的方法是可行的。

表 1 退火铁、冷轧铁和混合铁的多普勒展宽 S 参数及正电子寿命参数

Table 1 Doppler broadening S parameter and positron lifetime parameters for annealed, cold-worked and mixed irons.

样品状态 State of samples	S 参数 S -parameter	第一寿命 First lifetime τ_1 / ps	第二寿命 Second lifetime τ_2 / ps	第二寿命强度 Second lifetime intensity I_2 / %	平均寿命 Average lifetime τ_m / ps
退火铁 Annealed iron	0.410 6±0.000 8	108.7±0.9	380.0±13.0	5.25±0.35	123.0±1.5
冷轧铁 Cold-worked iron	0.429 4±0.000 8	124.4±1.4	343.7±7.6	15.17±0.69	157.7±2.3
混合铁（未扣除退火铁的贡献） Mixed iron (uncorrected)	0.421 2±0.000 8	114.8±0.6	345.1±2.8	11.79±0.22	142.0±0.8
混合铁（扣除了退火铁的贡献） Mixed iron (corrected)	0.431 8±0.000 8	123.5±1.4	343.0±6.5	17.20±0.65	161.3±2.2

图 2 进一步给出退火铁、冷轧铁和混合铁样品的正电子寿命谱。从图 2 可以看出混合铁（未扣除退火铁的贡献）的寿命谱介于纯铁和冷轧铁之间；混合铁（扣除了退火铁的贡献）和冷轧铁的寿命谱基本一致，这说明混合铁（扣除了退火铁的贡献）测量等价于传统“三明治式”夹心结构的冷轧铁测量。

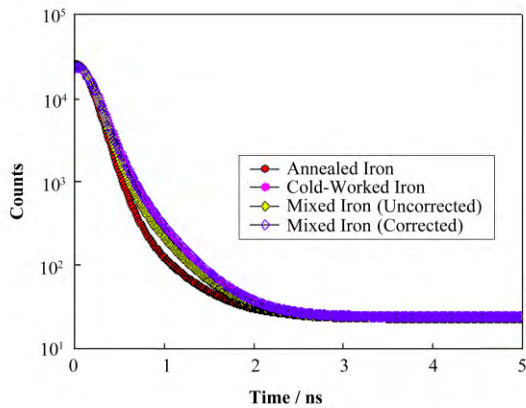


图 2 退火铁、冷轧铁和混合铁的正电子寿命谱

Fig.2 Positron lifetime spectra of annealed, cold-worked and mixed irons.

2.2 正电子 NDT 方法在辐照损伤样品中的应用

在室温下，对 Hastelloy 合金辐照损伤样品分别按照图 1 无损检测装置做多普勒展宽和正电子寿命谱，实验时采用单片未辐照样品作为参考样品，辐照峰值剂量分别为 0.5 dpa、1 dpa、3 dpa 样品以及

未辐照样品各一片作为待测样品，所得的结果如图 3 和图 4。很明显地看出，图 3 和图 4 结果变化一致，而且在扣除参考样品材料的贡献后，所得的结果更加明显，多普勒展宽 S 参数和正电子平均寿命都能灵敏反映损伤样品内部缺陷的变化。在低剂量的辐照下(<0.5 dpa)， S 参数和正电子平均寿命 τ_m 快速地增加，表明快速地产生大量的缺陷；随着辐照剂量的增加(<1 dpa)， S 参数和正电子平均寿命 τ_m 的快速增加变慢；继续增加辐照量(<3 dpa)， S 参数和正电子的平均寿命 τ_m 有所降低，可能是因为产生大的空位团或者空洞崩塌所致，这与文献报道的结果一致^[15-16]。图 3 和图 4 所得结果表明这种正电子无损检测方法是可灵敏探测辐照损伤样品内的缺陷。

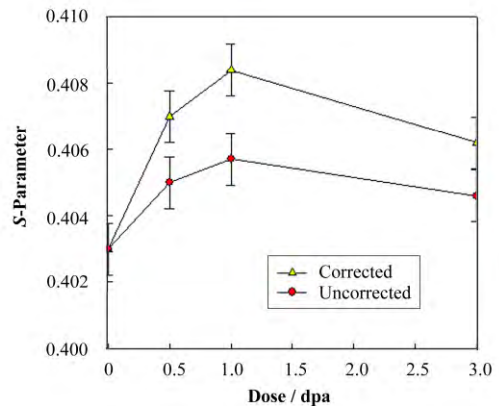


图 3 S 参数随辐照剂量变化

Fig.3 Change of S -parameter with irradiated dose.

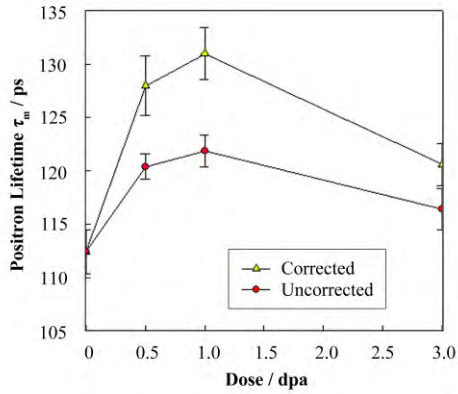


图4 正电子平均寿命 τ_m 随辐照剂量变化

Fig.4 Change of positron average lifetime τ_m with irradiated dose.

综上所述, 正电子 NDT 新技术是材料损伤的早期阶段特别灵敏的 NDT 方法, 该方法有可能真正从原子尺度上给出材料损伤的判据, 比常用的宏观或微观损伤判据更灵敏。这种正电子 NDT 装置可望用于实际材料(厚样品和大样品)的 NDT, 特别是应用于核电站 RPV 钢在役定期监测及寿命评估等方面。目前, 测试平台的搭建工作已初步完成, 下一步主要解决软件问题, 实现多普勒和寿命谱同时测量(可在起始 γ 信号探测器和终止 γ 信号探测器之间放置一个高纯 Ge 半导体探测器来实现)以及改进测试系统的计数率和分辨率实现探测二维缺陷分布等问题。

3 结语

利用我们初步搭建的正电子 NDT 装置, 分析了形变及辐照损伤材料的缺陷状态, 证实了可以使用单片样品探测材料内部缺陷。该方法有望真正从原子尺度上给出材料损伤的判据, 可方便、快速及高灵敏探测厚样品和大样品的缺陷状态。

参考文献

- 张俊哲. 无损检测技术及其应用[M]. 北京: 科学出版社, 2010
ZHANG Junzhe. Nondestructive testing technology and application[M]. Beijing: Science Press, 2010
- 王少阶, 陈志权, 王波, 等. 应用正电子谱学[M]. 湖北: 湖北科学技术出版社, 2008
WANG Shaojie, CHEN Zhiquan, WANG Bo, *et al.* Applied positron spectroscopy[M]. Hubei: Hubei Science and Technology Press, 2008
- Hutchings M T, Buttle D J, Colbrook R, *et al.* Positron

annihilation for the non-destructive assessment of the early stages of damage[J]. Journal De Physique IV, 1995, **5**(C1): 111-117

- 吴奕初, 田中卓, 常香荣, 等. 不同速度拉伸变形时高纯铁的正电子湮没研究[J]. 物理学报, 1991, **40**(11): 1879-1882
WU Yichu, TIAN Zhongzhuo, CHANG Xiangrong, *et al.* Positron annihilation study on deformation of high purity iron under different strain rate[J]. Acta Physica Sinica, 1991, **40**(11): 1879-1882
- 王宝义, 魏龙, 张天保, 等. β^+ - γ 符合正电子湮没寿命谱仪的研制[J]. 核技术, 2002, **23**(4): 228-230
WANG Baoyi, WEI Long, ZHANG Tianbao, *et al.* Construction of a positron lifetime spectrometer with β^+ - γ coincidence[J]. Nuclear Techniques, 2002, **23**(4): 228-230
- Somieski B, Krause-Rehberg R, Salz H, *et al.* Application of the positron lifetime spectroscopy as method of non-destructive testing[J]. Journal De Physique IV, 1995, **5**: C1-127-134
- Wirtz M, Eich P, Haaks M, *et al.* Non-destructive evaluation of plasticity and prediction of fatigue failure in industrial aluminum alloys with positrons[J]. Physica Status Solidi A, 2012, **207**(8): 1827-1831
- Yamawaki M, Kobayashi Y, Hattori K, *et al.* Novel system for potential nondestructive material inspection using positron annihilation lifetime spectroscopy[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2011, **50**: 086301
- Pujari P K, Sudarshan K, Tripathi R, *et al.* Photon induced positron annihilation spectroscopy: a nondestructive method for assay of defects in large engineering materials[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 2012, **B270**: 128-132
- 张翼, 杨祎罡, 李元景, 等. 利用韧致辐射 X 射线进行正电子分析的研究[J]. 核电子学与探测技术, 2011, **31**(4): 373-377
ZHANG Yi, YANG Weigang, LI Yuanjing, *et al.* A new method of positron analysis with Bremsstrahlung-induced X-ray[J]. Nuclear Electronics and Detection Technology, 2011, **31**(4): 373-377
- 任宁莉, 赵新强, 张彦伟, 等. 基于 PIPA 技术的固体推进剂无损检测研究[J]. 固体火箭技术, 2010, **33**(5): 590-593
REN Ningli, ZHAO Xinqiang, ZHANG Yanwei, *et al.* Study on nondestructive detection in solid propellant based on PIPA[J]. Journal of Solid Rocket Technology,

- 2010, **33**(5): 590–593
- 12 吴奕初, 朱梓英, 伊东芳子, 等. 不同方式变形时高纯铁的正电子寿命研究[J]. 核技术, 1998, **21**(3): 135–137
WU Yichu, ZHU Ziyang, ITOH Yoshiko, *et al.* Positron lifetime studies of high purity iron samples with different deformation ways[J]. Nuclear Techniques, 1998, **21**(3): 135–137
- 13 Mohamed H, Kwon J, Kim Y M, *et al.* Vacancy-type defects in cold-worked iron studied using positron annihilation techniques[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 2007, **B258**: 429–434
- 14 Jerzy Dryzek. Positron studies of subsurface zone in pure iron induced by sliding[J]. Tribology Letters, 2011, **42**: 9–15
- 15 Jin S X, Guo L P, Yang Z, *et al.* Microstructural evolution in nickel alloy C-276 after Ar⁺ iron irradiation[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 2011, **B269**: 209–215
- 16 Jin S X, He X F, Li T C, *et al.* Microstructural evolution in nickel alloy C-276 after Ar-ion irradiation at elevated temperature[J]. Materials Characterization, 2012, **72**: 8–14

Application of positron annihilation techniques in non-destructive testing

ZENG Hui¹ CHEN Zhiqiang¹ JIANG Jing¹ XUE Xudong¹ LIANG Jianping²
LIU Xiangbing³ WANG Rongshan³ WU Yichu¹

¹(School of Physics and Technology, Hubei Key Laboratory of Nuclear Solid State Physics, Wuhan University, Wuhan 430072, China)

²(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Jiading Campus, Shanghai 201800, China)

³(Center of Plant Life Management, Suzhou Nuclear Power Research Institute, Suzhou 215004, China)

Abstract Background: The investigation of the material damage state is very important for industrial application. Most mechanical damage starts with a change in the microstructure of the material. Positron annihilation techniques are very sensitive probes for detecting defects and damage on an atomic scale in materials, which are of great concern in the engineering applications. Additionally they are apparatus of non-destruction, high-sensitivity and easy-use. **Purpose:** Our goal is to develop a system to exploit new non-destructive testing (NDT) methods using positron annihilation spectroscopy, a powerful tool to detect vacancy-type defects and their chemical environment. **Methods:** A positron NDT system was designed and constructed by modifying the "sandwich structure" of sample-source-sample in conventional Doppler broadening and positron lifetime spectrometers. Doppler broadening and positron lifetime spectra of a single sample can be measured and analyzed by subtracting the contribution of a reference sample. **Results:** The feasibility and reliability of positron NDT system have been tested by analyzing nondestructively deformation and damage caused by mechanical treatment or by irradiation of metal alloys. This system can be used for detecting defects and damage in thick or large-size samples, as well as for measuring the two-dimension distribution of defects in portable, sensitive, fast way. **Conclusion:** Positron NDT measurement shows changes in real atomic-scale defects prior to changes in the mechanical properties, which are detectable by other methods of NDT, such as ultrasonic testing and eddy current testing. This system can be developed for use in both the laboratory and field in the future.

Key words Positron annihilation, Non-destructive testing (NDT), Defect

CLC TL99, TG115.28