

การวัดการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างจุลภาคในโลหะโดยใช้  
ดอปเปลอร์บรอดเดนโพซิตรอนแอนิฮิลชันสเปกโตรสโคปี

นางสาว ปรวรรณ เสวตเวชากุล



วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต

สาขาวิชานิวเคลียร์เทคโนโลยี ภาควิชานิวเคลียร์เทคโนโลยี

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ปีการศึกษา 2541

ISBN 974-639-493-2

ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

**MEASUREMENT OF CHANGES IN MICROSTRUCTURES IN  
METALS USING DOPPLER-BROADENED POSITRON  
ANNIHILATION SPECTROSCOPY**

**MISS PORRAWAN SWATEWACHARKUL**

**A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements  
for the Degree of Master of Sciences in Nuclear Technology**

**Department of Nuclear Technology**

**Graduate School**

**Chulalongkorn University**

**Academic Year 1998**

**ISBN 974-639-493-2**

Thesis Title            Measurement of changes in microstructures in metals using  
Doppler-broadened positron annihilation spectroscopy.

By                        Miss Porrawan    Swatewacharkul

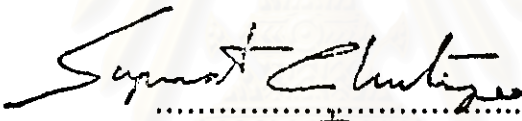
Department            Nuclear Technology

Thesis Advisor        Dr. Visit    Thaveeprungsriporn

Thesis Co-advisor    Asst. Prof. Suvit    Punnachaiya

---


Accepted by the Graduate School, Chulalongkorn University in Partial  
Fulfillment of the Requirements for the Master's Degree

  
..... Dean of Graduate School  
(Professor Suphawat Chutivongse, M.D.)


THESIS COMMITTEE

  
..... Chairman

(Assistant Professor Nares Chankow)

  
..... Thesis Advisor

(Dr. Visit Thaveeprungsriporn)

  
..... Thesis Co-advisor

(Assistant. Professor Suvit Punnachaiya)

  
..... Member

(Associate Professor Somyot Srisatit)

  
..... Member

(Attaporn Pattarasumunt)

ประมวล เสวตเวชากุล : การวัดการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างจุลภาคในโลหะโดยใช้ดอปเปลอร์บรอดเดนโพซิตรอนแอนนิลชันสเปกโตรสโคปี (MEASUREMENT OF CHANGES IN MICROSTRUCTURES IN METALS USING DOPPLER-BROADENED POSITRON ANNIHILATION SPECTROSCOPY) อาจารย์ที่ปรึกษา : อ. ดร. วิศิษฐ ทวีปรั้งนิพร, อาจารย์ที่ปรึกษาร่วม : ผศ. สุวิทย์ ปุณณชัยยะ ; 82 หน้า.

ISBN 974-639-493-2

วัตถุประสงค์หลักของวิทยานิพนธ์นี้ คือ 1) พัฒนาเทคนิคดอปเปลอร์บรอดเดนโพซิตรอนแอนนิลชันสเปกโตรสโคปี ให้เป็นเทคนิคการตรวจสอบแบบไม่ทำลายในการหาการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างจุลภาคของวัสดุ และ 2) ประยุกต์ใช้เทคนิคนี้ตรวจสอบเซนซิไทเซชันในเหล็กกล้าไร้สนิม

ระบบวัดด้วยเทคนิคดอปเปลอร์บรอดเดนโพซิตรอนแอนนิลชันที่พัฒนาขึ้น ประกอบด้วยต้นกำเนิดรังสีโพซิตรอน  $\text{Na}^{22}$  ความแรง 59  $\mu\text{Ci}$ , หัววัดรังสีกึ่งตัวนำชนิดเจอร์มาเนียมบริสุทธิ์ร่วมกับระบบวิเคราะห์สเปกตรัมรังสีแกมมา ความละเอียดของวิเคราะห์สูง โดยใช้เทคนิคเลือกช่วงวิเคราะห์พลังงาน 2 ช่วงด้วยไบแอสแอมพลิฟายเออร์ และวิเคราะห์สเปกตรัมต่อเนื่องด้วยอุปกรณ์วิเคราะห์หลายช่อง ซึ่งมีขนาดหน่วยความจำ 4096 ช่องวิเคราะห์ 2 ชุด และเครื่องคอมพิวเตอร์เพื่อใช้เก็บข้อมูลจากการทดลอง เทคนิคการชดเชยได้นำมาใช้ในการแก้ไขค่าผิดพลาดทางสถิติที่เกิดจากความไม่เสถียรของเครื่องมือและความแปรปรวนในระหว่างการทดลอง ซึ่งพบว่าเทคนิคดังกล่าวสามารถลดค่าเบี่ยงเบนมาตรฐานให้อยู่ภายใน  $\pm 2$  เปอร์เซ็นต์

เทคนิคดอปเปลอร์บรอดเดนโพซิตรอนแอนนิลชันที่พัฒนาขึ้นได้นำไปใช้ในการหาความหนาแน่นของดิสโลเคชันในทองแดงและหาสภาวะเซนซิไทเซชันในเหล็กกล้าไร้สนิม พบว่าการเปลี่ยนแปลงของค่า S พารามิเตอร์ สำหรับตัวอย่างทองแดงเพิ่มขึ้นตามค่าความเสียหายที่เกิดขึ้นจนถึง 6.6 เปอร์เซ็นต์ หลังจากนั้นก็ลดลง สำหรับการเปลี่ยนแปลงของค่า S ในการหาสภาวะเซนซิไทเซชันในเหล็กกล้าไร้สนิม พบว่าค่า S ได้เพิ่มขึ้นตามเวลาที่ใช้เซนซิไทเซชันจนกระทั่ง 8 ชั่วโมงหลังจากนั้นจึงลดลง การเพิ่มขึ้นของค่า S นั้นนับว่ามีความสัมพันธ์โดยตรงกับการเกิดโครเมียมคาร์ไบด์ที่ขอบเกรน ดังนั้นเทคนิคนี้จึงสามารถนำมาใช้เป็นเทคนิคการตรวจสอบแบบไม่ทำลายในการวัดการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างจุลภาคในวัสดุได้

ภาควิชา..... วิชาเคสึร์เทคโนโลยี  
สาขาวิชา..... วิชาเคสึร์เทคโนโลยี  
ปีการศึกษา..... 2541

ลายมือชื่อนิสิต..... ปุณณชัยยะ เสวตเวชากุล  
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา..... วิศิษฐ ทวีปรั้งนิพร  
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม..... สุวิทย์ ปุณณชัยยะ

\*\* C819035 : MAJOR NUCLEAR TECHNOLOGY

KEY WORD: POSITRON ANNIHILATION / DOPPLER-BROADENED POSITRON ANNIHILATION SPECTROSCOPY / S-PARAMETER / DISLOCATION / SENSITIZATION

PORRAWAN SWATEWACHARKUL : MEASUREMENT OF CHANGES IN MICROSTRUCTURES IN METALS USING DOPPLER-BROADENED POSITRON ANNIHILATION SPECTROSCOPY. THESIS ADVISOR : Dr. VISIT THAVEEPRUNGRIPORN, Ph.D. THESIS CO-ADVISOR : ASSIST. PROF. SUVIT PUNNACHAIYA, M.Eng 82 pp. ISBN 974-639-493-2

The purpose of this research is 1) to develop Doppler-broadened positron annihilation (DBPA) technique as a non-destructive testing (NDT) technique to evaluate the changes in microstructures in materials and 2) to apply the technique to evaluate sensitization in stainless steels. The developed Doppler-broadened positron annihilation (DBPA) measurement system consists of a 59  $\mu\text{Ci}$   $\text{Na}^{22}$  positron source, a Canberra GC-1020 HP(Ge) detector in conjunction with a gamma ray spectrometer with the use of two independent units of a biased amplifier and a 4K MCA, 2 energy ranges of 358-567 keV and 1131-1337 keV with a channel factor resolution of about 50 eV/channel was achieved and a computer unit to collect the information. To compensate and/or correct for any statistical errors caused by instrument instability and experimental variations, the compensating technique was proposed and found to satisfactorily reduce the standard deviation to be within  $\pm 2\%$ .

The developed DBPA measurement was applied to evaluate dislocation density in copper specimens and sensitization condition in stainless steels specimens. It was found that  $\Delta S$  of copper specimens increases with deformation until about 6.6% when the  $\Delta S$  begins to decrease. This technique was applied to evaluate sensitization condition in stainless steels and it was found that  $\Delta S$  increases as the sensitization time increases although the  $\Delta S$  at 16 hr seems to slightly decrease after 8 hr. The increasing in the S parameter of sensitized specimen is believed to be related to the precipitation of chromium carbides or chromium depletion at the grain boundaries. Preliminary results indicate that this technique may be used as a non-destructive testing (NDT) technique for measuring the changes in microstructure in metals.

ภาควิชา..... วิศวกรรมเทคโนโลยี

สาขาวิชา..... วิศวกรรมเทคโนโลยี

ปีการศึกษา..... 2541

ลายมือชื่อนิสิต..... พ.ศ. ๒๕๔๑

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา.....

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาช่วย.....

## Acknowledgment



I gratefully acknowledge the Asahi Glass Foundation and graduate school of Chulalongkorn University for the fund to support this thesis and Thainox Steel Limited for the stainless steels sheet which was used as the tested specimen.

I should also like to thank to Dr. Visit Thaveeprungsriporn, my thesis advisor, Assist. Prof. Suvit Punnachaiya , my thesis co-advisor, and Mr. Decho Thong-Aram for their useful guidance.

Special thanks are conveyed to my sisters and brother including intimate friends in Thailand, USA and Australia for giving me encouragement, motivation and consolidation during the whole time for my study.

Last but not least, I wish to give my heartfelt and grateful thanks to my beloved parents who always place the most importance on education. I should also like to acknowledge my debt to them. Without both of them, I would never have a valuable chance to develop my academic knowledge.

## Contents

	<b>page</b>
Abstract (Thai).....	iv
Abstract (English).....	v
Acknowledgements.....	vi
Contents.....	vii
Tables contents.....	x
Figures contents.....	xi
CHAPTER I Introduction.....	1
1.1 Background.....	1
1.2 Objectives.....	6
1.3 Scope of thesis.....	6
1.4 Methodology.....	6
1.5 Potential applications.....	7
1.6 Relative research.....	7
CHAPTER II The use of positron for the study in materials.....	10
2.1 Introduction.....	10
2.2 Interaction of positron annihilation in materials.....	10

## Contents (Cont.)

2.3	The category of positron annihilation measurement.....	12
2.4	Doppler-broadened positron annihilation (DBPA) spectroscopy.....	18
2.4.1	DBPA measurement system.....	20
2.4.2	S parameters.....	24
2.5	Applications of DBPA spectroscopy in material science.....	30
CHAPTER III The development of Doppler-broadened		
	positron annihilation technique.....	35
3.1	Introduction.....	35
3.2	The DBPA measurement system.....	36
3.3	Compensating technique.....	40
CHAPTER IV Experiments.....		
4.1	Introduction.....	49
4.2	Experimental apparatus.....	49
4.2.1	DBPA measurement system.....	50
4.2.2	Slow stain tensile (SSRT) machine.....	51
4.2.3	High temperature vertical furnace.....	51
4.2.4	Mini-computerized milling machine.....	54
4.3	Experimental procedures.....	55
4.3.1	Evaluation of dislocation density in copper.....	56



## Contents (Cont.)

4.3.2	Evaluation of sensitization condition of 304 stainless steels.....	58
CHAPTER V	Experimental results and discussion.....	60
5.1	Introduction.....	60
5.2	Experimental results and discussion.....	61
5.2.1	Evaluation of dislocation density in copper.....	61
5.2.2	Evaluation of sensitization in stainless steels.....	71
5.3	Conclusion.....	77
Reference.....		78
Biography.....		82

สถาบันวิทยบริการ  
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

## Table contents

	<b>Page</b>
Table 4.1 The chemical composition of copper specimens.....	57
Table 4.2 The matrix of copper specimens.....	58
Table 4.3 The chemical composition of D-189 Thainox 304 stainless steel .....	59
Table 5.1(a) S values of the first series of copper specimens with standard deviation.....	62
Table 5.1(b) S values of the second series of copper specimens with standard deviation.....	63
Table 5.1(c) S values of the third series of copper specimens with standard deviation.....	64
Table 5.1(d) S values of the fourth series of copper specimens with standard deviation.....	65
Table 5.2 The change of S value of deformed copper specimens as compare to an undeformed with standard deviation.....	66
Table 5.3 The S value of stainless steels specimens as a function of sensitization with standard deviation.....	71
Table 5.4 Change of S value as a function of sensitization with standard deviation.....	72

## Figure contents

	Page
Figure 1.1 (a) an edge dislocation (b) a Screw dislocation.....	3
Figure 1.2 The lineshape change with the percentage reduction in Sample thickness resulting from unidirection cold rolling.....	4
Figure 1.3 The effect of chromium concentration on grain boundaries cracking of Ni-base alloy.....	5
Figure 2.1 The annihilation process.....	11
Figure 2.2 Momentum conservation of the two $\gamma$ -ray positron annihilation.....	12
Figure 2.3 Angular distribution spectra for annealed and deformed sample.....	13
Figure 2.4 The definition of the birth and death photons.....	14
Figure 2.5 The basic circuit of an apparatus for lifetime measurement.....	15
Figure 2.6 The schematic arrangement of angular correlation measurement.....	16
Figure 2.7 The schematic diagram of DBPA measurement system.....	17
Figure 2.8 The Doppler-broadened positron annihilation spectroscopy of annealed and deformed copper.....	19
Figure 2.9 The decay scheme of $\text{Na}^{22}$ .....	21
Figure 2.10 The definition of area for calculation of the parameter.....	22

## Figure contents (Cont.)

Figure 2.11	The variation of S parameter with different moveable gamma source.....	26
Figure 2.12	S parameter for a $\text{Be}^7$ reference curve, a Doppler-broadened $\text{Na}^{22}$ in indium curve and the corrected Doppler-broadened curve....	28
Figure 2.13	The variation lifetime and S parameter as a function of the annealing temperature for the proton irradiation sample.....	31
Figure 2.14	Correlation between the oxide film form on titanium foils and corroded at various polarization potential and S value.....	32
Figure 2.15	Change in S parameter in 316 stainless steels as a function of fatigue life.....	34
Figure 3.1	The arrangement of three plastic plates as a sample and source holder.....	37
Figure 3.2	The positron source and sample holder with positron source and two investigated specimens.....	38
Figure 3.3	Change in S parameter with run number for a series of Experiment on a single aluminum specimens.....	39
Figure 3.4	The schematic of compensating technique.....	41
Figure 3.5	Correlation between S parameter of 1274 keV and 511 keV.....	42
Figure 3.6	The procedure used in compensating technique.....	43
Figure 3.7	Change in S parameter and corrected S parameter for a series of experiment on single Al sample.....	44
Figure 3.8	The schematic diagram of developed DBPA measurement.....	46

## Figure contents (Cont.)

Figure 3.9	The set up DBPA measurement system with 2 MCAs.....	48
Figure 4.1	The SSRT unit.....	52
Figure 4.2	The details of SSRT unit and failure sample.....	53
Figure 4.3	The high temperature vertical furnace.....	54
Figure 4.4	Mimaki-300 mini-computerized milling machine.....	55
Figure 4.5	The schematic drawing of a copper tensile specimen.....	56
Figure 5.1	The true stress-true strain behavior for Cu specimen.....	61
Figure 5.2(a)	The correlation between average S values as a function of percent deformation of the first series for copper specimen.....	62
Figure 5.2(b)	The correlation between average S values as a function of percent deformation of the second series for copper specimen.....	63
Figure 5.2(c)	The correlation between average S values as a function of percent deformation of the third series for copper specimen.....	64
Figure 5.2(d)	The correlation between average S values as a function of percent deformation of the fourth series for copper specimen.....	65
Figure 5.3	The change in S value of deformed specimens as compare to an undeformed specimens.....	67
Figure 5.4	The change of $\Delta S$ value obtained from MacKenzie and our experiment.....	68
Figure 5.5	The evolution rate of dislocation density as a function of stress.....	70
Figure 5.6	The change in S parameter in SA 508 low alloy steels as a function of fatigue life.....	70

## Figure contents (Cont.)

Figure 5.7	The correlation between $\Delta S$ and the sensitization time.....	72
Figure 5.8(a)	The micrograph of stainless steels specimens after solution annealed.....	73
Figure 5.8(b)	The micrograph of stainless steels specimens after solution annealed and 8 hr sensitization.....	74
Figure 5.8(c)	The micrograph of stainless steels specimens after solution annealed and 16 hr sensitization.....	74
Figure 5.9	The correlation of $\Delta S$ value and percent chromium carbide area at the grain boundaries.....	75
Figure 5.10	The correlation of $\Delta S$ value, ultimate tensile strength and sensitization time.....	76