

用重离子束研究金属缺陷的生成

陈克勤

(中国科学院近代物理研究所)

一、离子辐照金属产生缺陷研究的意义

随着核科学技术的发展和应用,特别是加速器技术的发展,为离子束的应用研究提供了各种能量和各种元素的离子;以及各门学科的相互渗透,离子辐照效应研究已经在许多学科、领域中开展起来。在金属材料科学方面,离子辐照已经形成了许多新的边缘学科或学科分支。例如(1)离子辐照金属模拟中子辐照损伤的研究。这是由于反应堆材料或者聚变堆真空壁材料的中子辐照损伤研究需要而发展起来的。因为它们离子和中子辐照级联碰撞阶段的物理过程是一致的,但是离子辐照产生PKA(初级击出原子)的效率要比中子辐照的效率要高得多。又因为目前尚没有完全合适的强中子源来做这种研究的缘故,因此离子辐照损伤研究引起了人们的重视;(2)离子注入金属材料表面改性研究是以离子注入渗杂,并伴随着位移缺陷产生,形成新的相态、结构、组织,从而改善了原来金属表面的性质。由于它具有明显的应用价值,所以现在正广泛的开展了研究

与应用工作。多层薄膜的离子束混合效应也是近期发现的,这是一种有意义的有应用价值的辐照效应。虽然它的机制、理论解释现在还不能完全清楚,但是它与原子位移、辐照增加扩散过程有关,是值得研究的;(3)在“注入冶金学”的研究中,根据一定的配伍,用大剂量离子辐照金属可以形成非晶态合金。同时非晶态合金的辐照效应研究也是引起人们注意的新兴课题。一般认为离子辐照引起原子位移,扰乱了晶体结构,使原有的长程有序状态受到破坏,从而使晶态变成非晶态。

上述与离子辐照有关的金属材料科学方面的几个研究分支都涉及到一个共同的基本问题,即缺陷生成截面的确定以及它与入射粒子能量的关系,这是许多年来在辐照效应研究中人们很重视的一个问题。目前这方面的研究工作大部份都是在几百个千电子伏到几兆电子伏的能量范围进行的,即入射粒子能量在库仑势垒以下的能区中进行的,已经取得了不少进展^[1-4]。即将建成的兰州重离子加速器是一个大型的加速器系统,它的预注入器也可以单独使用,其输出的离子束能量比一些小型加速器要高得多。表1给出了

表1 兰州重离子回旋加速器系统的一些离子束能量、射程数据

离子	预注入器束流		主器束流	
	能量 (MeV/A)	在镍中的射程 (μm)	能量 (MeV/A)	在镍中的射程 (μm)
^{12}C	0.94—7.58	(6MeV/A) 37.85	9.8—88	(12MeV/A) 111.6
^{20}Ne	0.29—8.38	(6MeV/A) 27.40	3—98	(12MeV/A) 73.36
^{40}Ar	0.29—4.19	(4MeV/A) 16.06	3—46	(12MeV/A) 60.179
^{84}Kr	0.64—0.96	(0.9MeV/A) 5.94	6.6—10	(10MeV/A) 40.8

该加速器的一些离子束的能量和在镍中的射程数据。这些比较高能量的重离子束必将为固体和材料科学的研究提供新的工具, 扩展研究范围。同时也提出了一些新的值得研究的课题。本文的目的就是在高能离子束的条件下, 对缺陷生成截面研究中的有关问题和有利条件进行讨论。

二、缺陷生成截面的计算公式

用能量为 E 的离子辐照金属, 它的缺陷生成截面(即Frenkel对的生成截面)可以表示为:

$$\sigma_F(E) = \int_{E_d}^{T_M} \frac{d\delta(E, T)}{dT} v(T) dT \dots (1)$$

式中 E_d 是晶格原子的平均位移阈能, 大多数金属的 $E_d < 50\text{eV}$ 。 T_M 是PKA的最大能量,

在弹性散射中 $T_M = \frac{4m_1m_2}{(m_1+m_2)^2} E$, (m_1, m_2

分别是辐照离子的质量数和靶原子的质量数)。

$\frac{d\delta(E, T)}{dT}$ 是入射能量为 E 的辐照离子

在靶中击出能量为 T 的靶原子的微分截面。 $v(T)$ 是一个能量为 T 的PKA所产生的次级的Frenkel对的总数。由于重离子在物质中的慢化, 一个能量为 E 的重离子在它所辐照的材料中产生的Frenkel对的总数就应该是下面的式子:

$$N_F(E) = \int_{E_d}^E \frac{dE'}{S(E')} \int_{E_d}^{T_M} \frac{d\delta(E, T)}{dT} v(T) dT \dots (2)$$

式中的 $S(E)$ 是重离子在被辐照材料中的阻止截面。从方程式(1)和(2)可以知道 $\frac{d\delta}{dT}$ 和 $v(T)$ 是两个非常重要的基本量, 它们

分别代表辐照产生缺陷的两个过程: 第一个过程是入射粒子与PKA的相互作用。当入射粒子的能量低于库仑势垒时, 它们之间的相互作用主要服从库仑散射定律; 第二个过程是PKA与晶格原子的相互作用, 一个能量大

于 E_d 的PKA可能发生多重级联效应, 形成一个高密度的级联位移区域。这两个过程只有在 $m_1 < m_2$ 才能比较清楚的分开, 方程(1)和(2)才能成立。当 $m_1 \approx m_2$ 时, 第一次碰撞后出射粒子和PKA无法区分, 这时入射粒子所产生的位移总数就是 $v(E)$ 。

三、高能重离子为研究金属中的缺陷生成提供了新工具, 同时也提出了新问题

这里着重从高入射能量这个条件出发来讨论问题, 能量范围是接近或者大于入射离子与靶核系统的库仑势垒高度。

1. 较高的入射能量就有一个较长的平均射程。这个特点无论在损伤、改性研究中, 还是在所谓“注入冶金学”的研究中, 高能重离子辐照可以产生一个较为均匀的较厚的辐照效应区域。在表(1)中列举了一些离子在镍中的射程, 同时由于在样品深部产生缺陷受表面尾间的影响小^[6]。这个特点还可能为较厚的多层薄膜的离子束混合提供有利的工具, 也可能为较厚的大规模集成电路进行模拟辐照试验。

2. 入射离子能量超过库仑势垒, 核力对散射截面的影响不可忽视^[1,6]。此时, 入射离子与靶核的弹性散射过程常用光学模型来处理, 这时微分散射截面出现振荡现象, 这在核反应研究中是较为成熟的方法。同时非弹性散射也会发生, 它对于PKA能谱是有影响的。G.P.Chursin^[7]等人针对用20MeV质子辐照铜靶的情况, 分别对弹性散射和非弹性散射过程在损伤能量截面中的贡献做了计算, 其结果如图1所示。图中的曲线展示出了两种散射过程所产生的PKA的级联效应与相应的PKA能量关系。图中的横轴是对数坐标, 纵轴为 $dN/d\log T$ 。

$$\frac{dN}{d\log T} = \text{const} \cdot T \cdot v(T) \left(\frac{d\delta}{dT} \right) \dots (3)$$

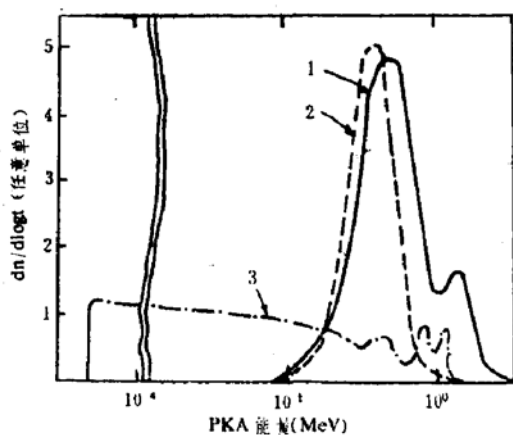


图1. $p(20\text{MeV}) + {}^{63}\text{Cu}$ 损伤能量图谱
 曲线1. 是按照作者所提出的方法计算得到的非弹性散射的损伤能量
 曲线2. 是按照Logans方法计算得到的非弹性散射的损伤能量
 曲线3. 是弹性散射的损伤能量。

根据计算结果，作者指出全部非弹性道所产生的位移数占全部位移数的37%，这是相当高的比例。同时作者又以不同数量的中子、质子、 α 粒子辐照 ${}^{63}\text{Cu}$ 作为例子，对于核反应和弹性散射过程所产生的位移数相对于总位移数的比例做了计算，其结果列于图2中。计算结果表明：非弹性过程的贡献随着轰击粒子的能量的增加而增加，但是随着粒子的电荷数的增加而减少，第二个结论是很容易

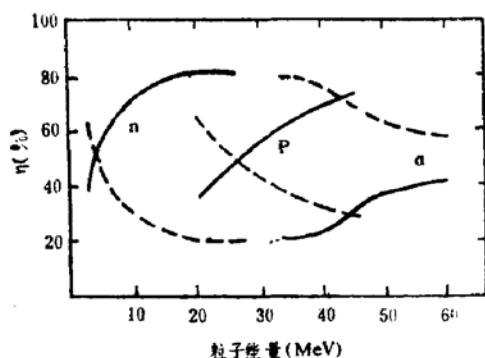


图2. 中子、质子、 α 粒子辐照铜时，弹性过程和非弹性散射过程所产生的位移原子数的比较。

从库仑相互作用的增加而得到解释，同时库仑作用增大时，弹性散射道产生的位移数就必然地增加。根据结果可以推论，若用兰州重离子回旋加速器所产生的重离子束进行辐照实验，在计算微分散射截面时不仅要考虑库仑力而且还需要考虑核力的作用，在选用

一些较轻的高能量重离子辐照时，不仅是弹性散射过程的贡献，可能还要考虑非弹性散射过程的贡献；如全熔核过程和深部非弹性散射过程等。以 $10\text{MeV}/\text{A}$ 能量的 ${}^{12}\text{C}$ 离子辐照镍为例，弹性散射，全熔核形成和深部非弹性散射对于生成PKA的贡献的相对比例大约是 $(2\sim 5):1:(0.5\sim 0.8)$ 。现在精确的计算出这些非弹性道对生成PKA的贡献也许是不可能的，但是应尽可能的利用重离子核反应的研究成果，做一些定量的估计是有意义的。

3. 随着PKA能谱向高能端扩展， $\nu(T)$ 的函数形式也应该认真研究，它是缺陷生成截面中一个很重要的量。在 $\frac{d\delta}{dT}$ 已知的条件下，

$\nu(T)$ 对预言材料在任何辐射环境中缺陷生成数目起着决定性的作用，同时对 $\nu(T)$ 函数进行深入的研究可以使我们对缺陷形成的级联过程有进一步了解。1955年Kinchin-Pease首先提出关于级联碰撞的简单模型。根据这个模型在级联碰撞中位移原子数和PKA能量之间的关系，如图3所示。图中的 E_c 是原子发生电离的能量界线，Kinchin-Pease的主要表达式是 $N(T) = \frac{E}{2E_d}$ ，($2E_d <$

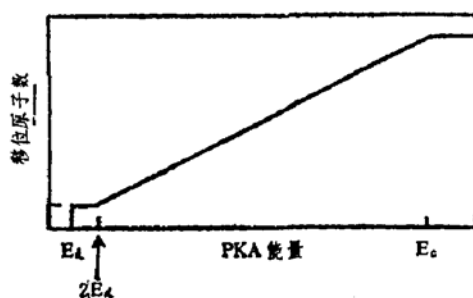


图3. Kinchin-Pease模型示意图。

$E < E_c$)。当然这个模型是过于简单了，它对于一些重要的问题做了较大的近似，如认为原子间的碰撞是硬球式的，而没有考虑某种作用势；又认为晶格原子的位移阈能是各向同性的，事实上是各向异性的；又假定每一个PKA的能量都全部产生次级的原子位移(当 $T > E_d$ 时)，但是实际上会产生非弹性散

射的原子碰撞而并不发生原子位移。因此后来有许多作者如Lindhard、Robinson等针对上述的近似将此模型做了不少改进，现在常用的改进了的Kinchin-Pease模型 (MKP) 是下面的形式

$$v(T) = \begin{cases} 0 & T < E_d \\ 1 & E_d < T < 2.5E_d \dots (4) \\ \frac{0.8E_D}{2E_d} & T > 2.5E_d \end{cases}$$

式中的 E_D 是PKA所携带的动能中能够引起次级原子位移的那一部份能量。应该注意到方程式(4)是一种理论上的结果，是应该通过实验来进行检验的。P.Jung^[6]和Merkle等人对 $v(T)$ 从位移阈能附近一直到 10^6 eV的范围内做了实验研究： $v(T)$ 函数在 $T < 100$ eV的范围内用电子辐照获得；在 $10^2 - 10^4$ eV的范围用轻离子辐照获得；而在 $10^4 - 10^6$ eV的范围内用 $T(d, n)$ 反应中子获得。图(4)

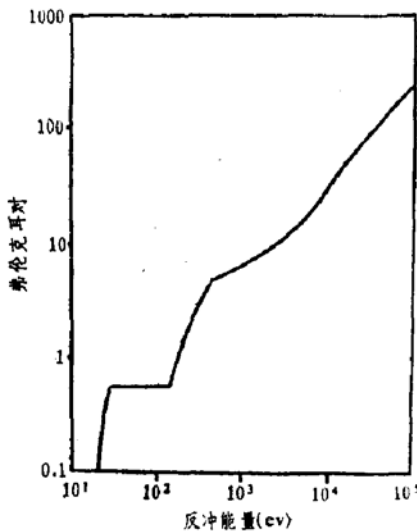


图4. 铜中的损伤函数。

是Merkle等人所得到的实验结果，它表明在阈能附近实验的 $v(T)$ 值与方程(4)所给出的值差别是很大的，在阈能以上的高能量范围内也不是一个严格的线性关系。这些实验结果表明MKP模型，或者方程式(4)预言金属由辐照产生的缺陷是不准确的，特别在 $T \lesssim 10^2$ eV的区域内MKP模型是不适用的。兰州重离子回旋加速器的建成，拓展了金属材料辐照效应研究的能量区域。在许多研究

中需要知道辐照引起的缺陷的数量和分布，也就是需要知道有相应的更高反冲能的 $v(T)$ 函数值，以及需要有更高能量的级联结构和特点的知识。这些知识是高能重离子束在高技术发展中应用的必要的物理基础。

更进一步，我们注意到损伤效率 ξ 随PKA的平均能量 $T_{1/2}$ 的变化关系的研究的意义。 ξ 的定义是实验测得的缺陷生成截面 σ_F^{exp} 对计算所得的缺陷生成截面 σ_F^{cal} 的比。后者由方程式(1)给出

$$\xi = \sigma_F^{exp} / \sigma_F^{cal} \dots (5)$$

实验的 σ_F^{exp} 常常是通过单位束流辐照引起样品的电阻变化来求得。它们两者通过下述方程联系起来

$$\sigma_F^{exp} = \frac{1}{\rho_F} \frac{d\Delta\rho}{d\phi} \dots (6)$$

这里 ρ_F 是Frenkel对的特征电阻， $\frac{d\Delta\rho}{d\phi}$ 是每一个入射离子引起的样品电阻的变化。这种离子辐照实验和电阻测量都是在液氮温度下进行的。 $T_{1/2}$ 是人们定义的一种PKA能谱的平均值，并由下述关系式来确定。

$$\frac{1}{2} \int_{E_d}^{T_M} v(T) \left(\frac{d\sigma}{dT} \right) dT = \int_{E_d}^{T_{1/2}} v(T) \left(\frac{d\sigma}{dT} \right) dT \dots (7)$$

这样定义的 $T_{1/2}$ 表示满足 $T \geq T_{1/2}$ 的PKA所产生的原子位移数占全部PKA所产生的原子位移数的一半。目前文献上的报导反映出用不同的粒子辐照不同的靶材料所得到的 ξ 对 $T_{1/2}$ 的关系有一个共同的变化趋势，如图5所示^[9]。 ξ 值随着 $T_{1/2}$ 的增大而单调下降，当 $T_{1/2} > 10^4$ eV以后就稳定在0.35附近。这结果表明：实验测得的原子位移数要比计算得到的小，并随着 $T_{1/2}$ 增加而单调下降，然后就保持着一定的常数值。许多作者对于这种情况做了讨论。目前认为在较高能量的PKA所产生的级联碰撞区域中，由于弛豫过程会出现缺陷的瞬时再结合和聚集，然而 ρ_F 对于单个缺陷

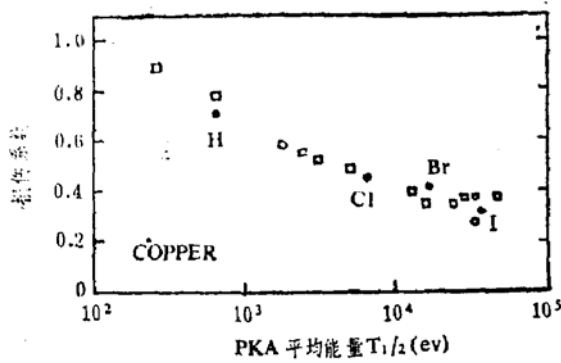


图5. 铜的损伤效率对于PKA的中间能量 $T_{1/2}$ 的关系, 同时也列出了其他作者的结果。

和聚集的缺陷的区分是不灵敏的, 那末在随着 $T_{1/2}$ 增大时这种再结合和聚集现象逐渐增多, ξ 值就下降。另外在 $T_{1/2} > 10^4 \text{eV}$ 时, 即有相当大一部份PKA的能量大于 10^4eV 时, 将有子级联产生, 每一个子级联的内部情况和一个PKA的级联区域相似。随着PKA能量的增加, 子级联数量也随之增加, 故 ξ 值保持稳定。通过 ξ 对 $T_{1/2}$ 关系的研究使我们对级联损伤区的结构的认识有所增加。我们可以设想: 当用能量大于 10MeV/A 的重离子辐照金属时, 其PKA能量有相当大的一部份在 10^6eV 以上, 相应的 $T_{1/2}$ 也就会比上述讨论中的值要大。在这样条件下级联损伤区域的结构如何呢? 子级联又会有什么新的情况出现呢? 较大的子级联区域可能会有重叠现象。另外在非弹性散射过程中出射粒子与PKA常常不是唯一的一对, 出射粒子或者是余核在质量上是有一个分布。每一种组合以一定的几率出现。这种复杂的PKA谱为级联碰撞计算带来了复杂性, 这些都是应该进行理论和实验两方面研究的。

四、小结

根据上面的讨论和分析, 可以认为在即将建成的重离子回旋加速器上开展金属辐照级联损伤的研究是必要的、有意义的。其中主要有: 1. 重离子辐照引起金属中缺陷的深度分布实验研究; 2. 重离子辐照的损伤能量

$$\text{截面的计算研究, 即 } \langle \sigma \hat{E} \rangle = \int_{E_d}^{\hat{T}_M} \frac{d\sigma(E, T)}{dT} \hat{E} dT;$$

3. 薄样品透射式的缺陷生成截面的测量; 4. 厚靶全阻止型的自离子辐照实验。第3, 4两个实验最好须在液氮的温度下, 如 10°K 的条件下进行, 以防止大的缺陷聚集过程出现。通过这些工作我们将会对重离子辐照的初生态缺陷的生成和级联过程有新的深入了解。

参 考 文 献

- [1] M. T. Robinson in *Radiation Damage in Metals* edited by N. L. Peterson and S. D. Harkness (ASM, 1976), pp. 1—27
- [2] R. S. Averback, R. Benedek and K. L. Merkle, *Phys. Rev. B* 18(1978)4156
- [3] R. S. Averback, *J. Nucl. Mater.* 108 & 109(1982)33—45
- [4] K. L. Merkle and W. E. King et al. *J. Nucl. Mater.* 117(1982)4—11
- [5] Shiraishi, K., et. al. *Effects of Radiation on Mater.* Eleventh Conference, ASTM STP 782 1982. pp 927—940
- [6] H. H. Anderson and H. Sprensen, *Radiat. Eff.* 14(1972)49
- [7] G. P. Chursin et al. *Radiat Eff.* 1982. Vol 59, 149—155
- [8] P. Jung, et al. "Defect Production Rates, by Electrons, Ions and Neutrons in Cubic Metals", *Effects of Radiation on Materials*, Eleventh Conference, ASTM STP 782, H. R. Brager and J. S. Perrin, Eds., American Society for Testing and Materials, 1982, pp. 963—982
- [9] A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata, and T. Nihira, *J. Nucl. Mater.*, 133 & 134 (1985) 365—369.