

文章编号: 1007-4627(2003)03-0201-07

加速器-电子显微镜联机进行材料科学研究的新进展

蒋昌忠, 任 峰, 张 丽, 石 璞, 范湘军

(武汉大学物理科学与技术学院, 湖北 武汉 430072)

摘 要: 离子或电子辐照引起的材料微结构演变是一个非常复杂的过程. 用加速器-电子显微镜联机装置可原位观察载能离子束辐照及辐照后退火引起的材料微结构演变, 并确定相应的辐照条件. 介绍了近 10 年来国际上利用加速器-电子显微镜联机装置开展材料科学研究的最新进展.

关键词: 原位观察; 电子显微镜; 辐照效应; 微结构演变

中图分类号: O572.2; TG115.21+5.3 **文献标识码:** A

1 引言

载能离子束技术已被广泛应用于材料科学、生命科学和化学等众多研究领域. 离子辐照会引起材料成分、原子环境、电子组态及相结构的变化, 从而导致材料性能的改变. 因此离子束技术是研究和获取高性能材料和器件的好方法, 特别是对半导体器件及大规模集成电路的发展起到了极大的推动作用.

近几年来, 离子束技术已成为一种形成纳米结构的有效方法. 用高能离子束辐照金属、合金、陶瓷和半导体材料可获得纳米晶体材料, 通过精确地控制实验条件, 可以使非晶基体中出现纳米晶体结构, 或使晶体材料转变为完全的纳米晶体材料. 辐照导致的纳米晶体可以是基体材料中的原始相, 也可以是不同成分的结晶相.

表 1 国际上加速器-电子显微镜联机装置一览表

序号	单位	加速器	电子显微镜	参考文献
1	美国阿贡国家实验室	2 MV NEC 串列型和 650 kV 离子注入型加速器	1.2 MV Kratos/AEI 高分辨透射电镜	1
		2 MV NEC 串列型加速器和 600 kV NEC 离子注入机	300 kV Hitachi H-9000NAR 中压透射电镜	2, 3
		650 kV NEC 离子加速器	JEM-ARM1000 高分辨电镜	4, 5
2	法国奥赛核谱质谱中心	200 kV CSNSM-IRMA 离子注入机	由 Philips EM 400 已更新为 Philips CM-12	6
3	日本原子能研究所	40 kV 加速器	JEM-2000FX 200 kV 热场发射枪分析电子显微镜	7
		两台加速电压分别为 30 kV 和 300 kV 的加速器	JEM-4000FX 透射电镜	8
4	日本北海道大学	300 kV 加速器	1 000 kV 高压透射电镜	9
5	日本九州大学	disktron-type 低能离子加速器	JEM-2000FX 透射电镜	10
6	日本国家金属研究所	两台加速电压分别是 30 kV 和 200 kV 的离子注入机	1 000 kV JEM-ARM1000 高压透射电镜	11
7	东京大学	400 kV Cockroft-Walton 重离子加速器	由 TEM 200C 已更新为 JEM-2000FX	12
8	日本国家材料科学研究所	两台加速电压分别是 30 kV 和 300 kV 的离子注入机	1 000 kV JEM-ARM1000 高压透射电镜	13

收稿日期: 2003 - 01 - 15; 修改日期: 2003 - 07 - 08

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10005005, 10275049)

作者简介: 蒋昌忠(1962-), 男(汉族), 湖北公安县人, 教授, 博士, 从事材料的离子束合成与改性研究.

离子束和固体相互作用过程是十分复杂的。注入元素、能量、剂量以及基体材料的温度、退火温度和时间等众多因素的变化都会造成注入后材料性能的差异。不同条件下的离子注入会导致晶格缺陷的产生和聚集、位移混合、辐射增强扩散、辐射诱发偏析和择优溅射等现象的出现。同时，离子注入纳米相的形成、级联位移的发展和辐照导致缺陷的位移等与辐照引起分解的积累密切相关。因此，一种能原位动态观测在不同辐照条件下样品微观结构变化及相变过程的实验装置显得十分重要，这就是加速器-电子显微镜联机装置。1978年，第一台加速器-电子显微镜联机装置在日本东京大学诞生，此后，许多国家都安装了类似的联机装置(如表1所示)。在文献[14]的基础上，本文将进一步介绍这方面的工作在近10年的新进展。

2 开展的研究工作及进展

国际上利用加速器-电镜联机装置开展的工作已深入到金属、合金、陶瓷和半导体材料等众多领域^[12]，下面简要介绍近10年国际上利用加速器-电镜联机装置开展的研究工作。

2.1 辐照导致的缺陷

入射离子撞击靶原子使其离开正常点阵位置发生位移，变成初级反冲原子(PKA)。当PKA的能量较大且高于晶格原子位移能时，将会产生一系列级联碰撞，结果形成高密度的位移区域，即级联。级联依赖于辐照温度、材料、注入离子的质量和能量^[13, 15]。分子动力学计算表明，在级联形成的初期，它是液体状的。在冷却速率很高的情况下，级联直接变成纳米尺寸的非晶区；否则，变成点缺陷或缺陷团簇^[16]。激烈的原子碰撞将在注入层中产生高密度点缺陷，辐照温度越低产生的点缺陷和缺陷团簇越多。注入原子的掺杂使注入层成为过饱和固溶体和很高的应力区，从而导致高密度位错的形成^[12]。因此室温下用高剂量重离子辐照金属、合金和不锈钢等材料，透射电子显微镜(TEM)观察发现，在辐照开始后立刻就出现了黑色的点，很快就确定其中的一些黑点是位错环，并且其尺寸在随后的辐照过程中逐渐变大；位错环之间由于相互作用形成混乱的位错；进一步辐照使得混乱的位错沿着特殊的结晶方向再规则地排列；最后形成稳定的类

似于多边形的微结构。根据位错环的生长行为的观察，在绝大多数高剂量离子辐照金属的情况下，高剂量注入区形成的位错环都是间隙型位错环，这是因为间隙原子在金属材料中有很高的运动性^[17]。注入原子捕获空位使点缺陷的运动性降低，从而使高密度间隙原子聚集在PKA周围形成位错环^[11]。重离子注入形成间隙位错环生长速度较慢^[18]。

当PKA的能量较小时，PKA留下的空位和间隙原子形成一对空位-间隙原子缺陷，即Frenkel缺陷对。Frenkel缺陷对和注入原子的相互作用控制着低能间隙型位错环的形成。与高能电子辐照相比，在相同单位原子位移量下，离子辐照产生的间隙型位错环的体密度比电子辐照产生的间隙型位错环的体密度高大约两个数量级。这是因为Frenkel缺陷对成为间隙型位错环的成核中心，使其更易捕获材料自身间隙原子形成位错环，使位错环核增加，从而使位错环的体密度变大，并且随着辐照剂量的增加位错环的密度线性增长。低温下间隙型位错环的密度随深度分布比较窄，当温度升高时由于缺陷的热运动和凝聚，密度分布逐渐展宽，分布峰值向深处移动且对应的密度变小^[11, 19]。

离子束、电子束双束辐照材料时，微结构演变过程必须同时考虑离子束导致缺陷的生长和电子束导致缺陷的消失^[9]。电子束不仅能延迟辐照区域位错环的形成，而且能提高电子束斑周围的位错环的生长，并且这种生长依赖于电子束的强度。这是因为电子束引起了从束中心到边缘的间隙原子流^[20]。因此在进行单离子束辐照研究时，离子辐照的过程中必须关闭电镜的电子束。

缺陷的产生和消失往往是同时并且是随机的，在低剂量(10^{14} ions/cm²)重离子辐照Au时就发现已有空位团簇消失，但是此时空位团簇的产生率大于消失率，随着辐照剂量的增加，当产生率和消失率相等时，其密度就保持在稳定状态。空位团簇消失主要是由于其吸收了来源于附近级联产生的间隙原子^[21]。

用高能、高剂量H或He辐照Si并在高温下退火会在Si中形成空位，当空位的密度超过临界空位密度时，空位聚集在一起形成纳米空位团簇。不同材料的临界空位密度是不同的，它与熔点下空位的运动性密切相关。值得指出的是高能离子辐照非晶半导体材料也能形成空位团簇。1.5 MeV Kr⁺在

室温下辐照非晶 Ge 出现了高密度空位团簇,随着辐照剂量的增加空位团簇迅速聚集成大的空洞,而总的表面能保持不变.当剂量达到 8.5×10^{15} ions/cm² 时,材料变成海绵状多孔结构^[22].用 Si 辐照含纳米空位团簇的晶体 Si 或非晶 Si,并用 TEM 原位观察纳米空位团簇大小变化,发现纳米空位团簇的平均直径都随注入剂量的增加而线性下降,并且非晶 Si 中的变小速率更快.在晶相 Si 中纳米空位团簇成为捕获游离的 Si 间隙原子的有效位置,或成为非晶化的成核位置.当辐照温度大于约 100 °C 时,纳米空位团簇接受辐照引起间隙原子并在其周围形成位错环;当辐照温度小于约 25 °C 时,辐照导致的缺陷与空位团簇相互作用导致在一定温度下的择优非晶化,空位团簇成为非晶化成核的优先位置,纳米空位团簇周围材料被非晶化.当空位周围地区完全非晶化时,继续注入将使空位团簇收缩甚至消失^[23].晶体 Si 中纳米空位团簇的平均直径变小是因为随着离子辐照的过程间隙原子的扩散率进一步增强,并大大高于空位的扩散率,从而间隙原子向纳米空位团簇扩散,使空位直径变小.对于非晶 Si 的情况,空位从纳米空位团簇中释放出来,使其直径变小^[24, 25].

如果控制辐照离子,加速器-电子显微镜联机装置就能观察单个辐照离子产生的级联,加速器-电子显微镜联机装置也是目前唯一能观察单级联事件的实验手段.用 400 keV Xe⁺ 模拟 Au 自身离子辐照 Au 样品观察离子辐照产生的损伤,发现单个辐照离子产生的级联密度正比于离子的剂量,当辐照剂量大于 10^{14} ions/cm² 时,级联消失.因此单个级联只能在低辐照剂量下观察.

2.2 辐照导致的非晶化

离子束辐照材料会导致材料的非晶化.用加速器-电子显微镜联机装置拍摄辐照过程中的材料选区电子衍射图和高分辨像可原位观察材料的非晶化过程.辐照后不久,辐照引起的级联产生的缺陷的密度或损伤能密度逐渐增大,单个级联退火或级联重叠在基体中出现了非晶化的孤立小区域.单个熔融级联退火形成的非晶区可用非晶内核和重结晶外壳模型表示.随着辐照剂量的增加,非晶区的尺寸增大且数量增多.当缺陷的密度超过一个临界值时,辐照损伤的积累使得在材料中形成一层非晶

层^[4, 6, 16].由重离子辐照导致的非晶化主要是由于单个级联引起的;而轻离子辐照导致的非晶化主要是由于缺陷积累引起的^[26].根据级联退火模型,辐照产生的级联越大,非晶化剂量越低,临界温度越高.不同辐照温度下非晶化的剂量不同,但所有材料的非晶化临界剂量都随辐照温度升高.因为温度越高基体材料重结晶的几率就越大,辐照产生的缺陷密度也越低^[4, 8].当辐照温度大于临界温度时,材料将不能完全非晶化^[27].临界剂量还与注入元素有关.用 Ne⁺, Xe⁺ 辐照烧绿石时,在低温下 Ne⁺ 辐照的非晶化剂量是 Xe⁺ 的 3 倍^[28].在 H₂⁺ 辐照下, TiC 由晶态转变成了非晶态,用相同能量的 D₂⁺ 辐照时,非晶化现象并没有出现.这是因为在低温下由于隧道效应, D 原子与 Ti, C 形成化学键比 H 原子形成相同的化学键要困难得多.

2.3 注入离子形成纳米颗粒

在离子注入引起的材料非晶化过程中也可形成纳米晶体.首先,非晶化过程中也可形成原始相的纳米晶体.辐照导致基体非晶化的孤立区域会随着辐照剂量的增加而尺寸增大、数量增多,最终剩下未被非晶化的区域成了纳米晶粒.材料由晶体变成了非晶基体中含纳米晶体的纳米相材料^[2, 6, 16](图 1).其次,离子辐照导致的成核生长也能形成纳米晶体.在辐照过程中,入射载能离子引起的高无序带内的点缺陷就形成了一些晶核.当晶核的尺寸超过临界尺寸时,为了降低自由能就成了重结晶的新晶核,并吸收点缺陷成核生长.离子束导致的这种成核和生长过程与冷加工金属材料的重结晶过程相似.另外,离子束外延重结晶同样能形成纳米晶体.在高温下,入射载能离子引起的高无序带内的位移原子在晶相/非晶相界面重结晶.点缺陷沿着未非晶化的晶核外延生长且晶向与核的晶向相似.外延重结晶的激发能比纯粹的热力学重结晶要小,因此在离子辐照导致非晶化的过程中就同时伴随了外延重结晶过程.因此离子辐照导致的纳米晶体是非晶化和晶体重结晶相互竞争的结果.

Ag 注入非晶 SiO₂ 的研究表明,当剂量超过某一临界值(4×10^{15} ions/cm²) 时开始形成 Ag 纳米晶粒,其平均尺寸和密度随注入剂量的增加而增加.注入后退火发现纳米晶粒的成核和生长过程同时出现,当温度高于 300 °C 时有 Ag 从体内移向表面并

从表面蒸发^[29]. 对 Ni 注入非晶 SiO₂ 的原位观察发现, 纳米颗粒的尺寸和分布依赖于注入剂量、束流密度和衬底温度. 纳米颗粒的平均尺寸和注入剂量的曲线关系显示, 平均尺寸随注入剂量先下降后逐

渐增加. 注入剂量小于 3×10^{15} ions/cm² 时, 纳米颗粒以成核为主, 反之以生长为主. 室温注入时相同剂量下大束流强度对应较大尺寸平均值, 但当衬底温度为 300 °C 时束流强度无明显影响^[30].

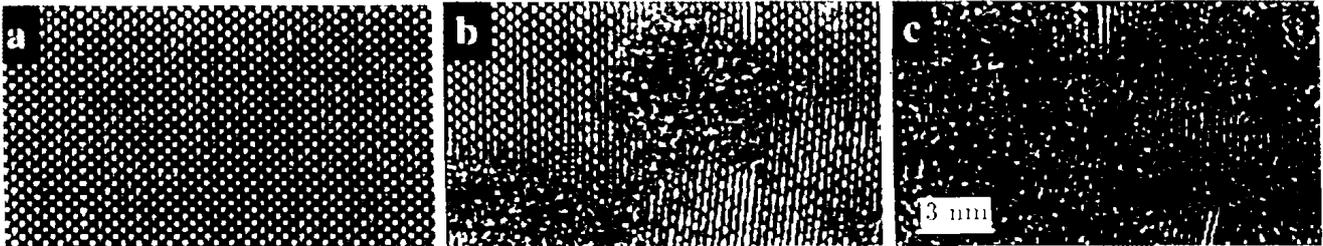


图 1 室温下用 1.5 MeV Kr⁺ 辐照人造钻石的高分辨像
(a) 辐照前, (b) 剂量为 1.7×10^{17} ions/cm², (c) 剂量为 5.1×10^{17} ions/cm².

金属和稀土金属注入 Si 会形成金属硅化物. Fe 离子注入 Si 形成的是 3 种不同结构相的 FeSi₂. Co 离子注入 Si 也形成两种不同的 CoSi₂, 通过 TEM 原位观察 A 型和 B 型 CoSi₂ 的密度、尺寸比和 Co 的位置的变化来分析 CoSi₂ 的生长机制. 结果表明 A 型的生长是以消耗 B 型 CoSi₂ 为代价的. 这种现象可用 B 型 CoSi₂ 不稳定而 A 型 CoSi₂ 的界面能较低的理论或 Ostwald ripening 理论解释^[31].

Si 注入 SiO₂ 基片然后在 1 150 °C 时退火, 形成了一种能光致发光的 Si 纳米晶体, 它可用作 Si 基光电子器件. 用轻离子或快电子辐照 SiO₂ 基体中的 Si 纳米晶体, 在 Si/ SiO₂ 界面点缺陷逐渐积累使 Si 纳米晶体由晶相转变为非晶相, 同时光致发光强度减弱并最终消失. 这是由于位于 Si 晶粒和 SiO₂ 界面间的点缺陷的积累引起的. 离子辐照只影响光致发光的强度而不改变其发光带的位置^[6].

对于惰性气体注入 Zr—Fe 多层膜的情况, TEM 观察表明 Zr 和 Fe 晶粒的生长率随注入离子质量的增加而加快且正比于单位原子位移量, 但是晶粒的生长率对辐照温度并不敏感. 实验结果与晶界运动模型相一致^[3].

值得注意的是低能高剂量惰性气体 Ne, Ar, Kr, Xe 离子在室温下注入金属中能形成纳米颗粒. 加速器-电子显微镜联机装置观察到了这些纳米颗粒的形成和生长过程, 它的结构通常与基体材料结构相同. 其颗粒的体积随注入剂量增大并有如下关系: $V_{pp1} = Kt^n$, 其中, V_{pp1} 是颗粒的平均体积, t 是离子注入的时间, K 在确定的实验条件下是一个常

数, n 是一个与样品温度、注入离子的能量和流量有关的一个系数^[6, 32]. 这些颗粒主要靠其内部的压力来保持其固体状态, 这个压力与颗粒的半径成反比, 因此其尺寸存在一个临界值. 惰性气体的质量越小其尺寸也越小. 对于 He, 由于其内聚能太小, 在室温下不能观察到它的晶体颗粒. Xe⁺ 注入 Al 中形成了两种不同尺寸的纳米晶体并引入层错(如图 2). 比较两种晶粒的位移表明, 位移发生在晶粒

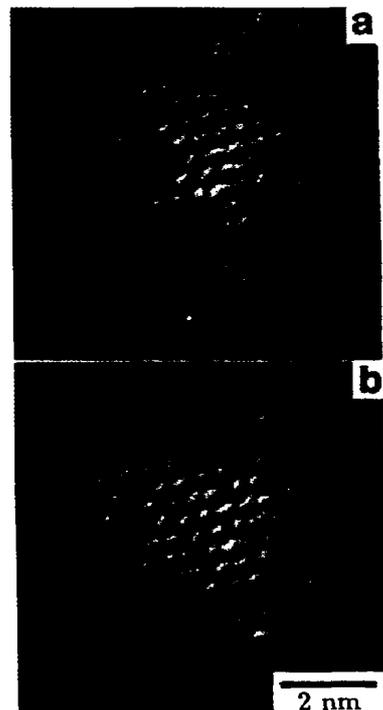


图 2 Xe⁺ 注入 Al 中形成的 Xe 纳米颗粒高分辨透射像
(a) 引入缺陷之前, (b) 引入缺陷之后.

和基体的界面之间, 这说明界面的位移综合了应力场的部分位错和界面相容性的要求^[33]. Xe^+ 注入 Al 后形成的面心立方结构纳米晶粒尺寸在 1—10 nm, 对于小于 2 nm 的氦晶粒无论在形状上还是结构上都是不稳定的. Ne^+ 注入 Al 后形成尺寸在 1.5—15 nm 之间的非晶颗粒. 分析氦和氦颗粒的动力学生长过程表明, 纳米颗粒的分解在注入过程中已开始, 颗粒的生长率随着注入剂量的增加而增加^[31]. 若用离子辐照以上样品会使颗粒增大. 用 Ar^+ 辐照 Xe^+ 注入 Al 中形成的 Xe 颗粒, 比辐照前增大了 27%, 而晶格常数保持不变^[10].

2.4 惰性气体元素注入形成气泡

当 H, He 和 Ar 离子的剂量不大时, 离子注入在材料中形成空位型位错环, 当在高剂量、高温条件下注入时, 还可以生成气泡(图 3). 高剂量高能 He 离子注入 W 的研究表明, He 和辐照引起的空位聚集一起在空位处形成了气泡, 随着辐照温度的升高, 气泡显著增长. 低能 He 离子注入, 由于其能量小于阈值位移能, 没有观察到碰撞损伤效应, 但由于电子激发效应, 有 He 微晶平面和间隙位错环及气泡形成. W 中的杂质原子捕获 He 原子形成气泡, 而气泡把 W 从晶格位置排挤开^[34]. 衬底温度对辐照导致微结构的变化影响很大, 在低温下气泡是不能移动的, 气泡凭借体内很高的气压而排挤间隙原子增大, 当其体积达到一定尺寸时停止生长; 随着温度的上升, 辐照引起的空位团簇的运动性增强, 气泡吸收运动的空位团簇生长; 在高温下当气泡的半径大于临界半径时, 气泡运动并凝聚. 离子注入块状样品在高温下能形成大的气泡, 而薄样品只能形成小气泡, 这是因为气体和空位逸出了薄样品的表面, 而在块状样品中气泡更易凝聚. 这表明在温度不是很高时, 气泡的形成和生长由气体的浓度控制; 在高温时, 它由气泡的运动控制^[5].

通过对 Ar^+ 和 Xe^+ 轰击 He 注入 Al 和 Au 薄片后形成的气泡样品的研究, 发现重离子辐照基体材料形成的疏级联碰撞(Al 中)和密级联碰撞(Au 中)对气泡的影响明显不同. 疏级联碰撞导致 He 逃出气泡而使气泡收缩, 而密级联碰撞导致气泡的布朗运动和消失. 气泡凝聚和收缩是由于出现在 Al 中疏级联碰撞引起的溅射和均匀化影响的结果; 而 Au 中气泡的运动直接是由气泡和密级联碰撞产生

的“熔融带”相互作用引起的^[35].

用电子束连续辐照 D^+ 和 He^+ 注入硅形成的气泡发现, 气泡的尺寸和密度显著下降. 这是由于入射电子的激发效应阻碍了稳定的 Si—D 链的形成. 当用高流量离子注入时, 将导致表面气泡破裂而灾难性地剥落, 分离良好的气泡并没有形成^[36].

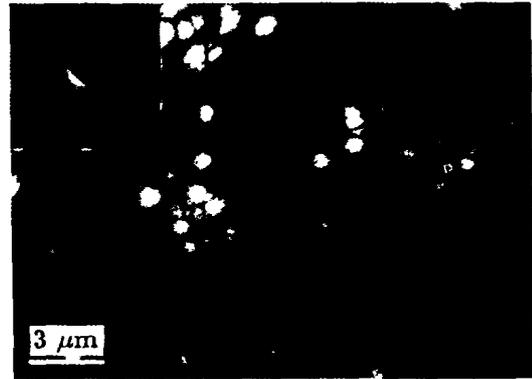


图 3 800 keV Kr^{2+} 在室温下注入黑云母产生气泡的明场场像照片

2.5 用离子注入法模拟核反应产生的影响

辐照损伤问题对于聚变和裂变反应核能体系结构材料来说是最重要的问题之一. 用高能加速离子轰击材料模拟核反应是研究核裂变反应进程中初始缺陷形成和积累过程的有效方法. 100 MeV 碘离子轰击 UO_2 和 $(\text{U}, \text{Gd})\text{O}_2$, 点缺陷积累使得材料晶格系数随着离子流量的增大而增大. 碘离子的分布曲线在离表面 6—7 μm 处有一个峰, UO_2 的位错环和杂乱的位错深度分布曲线在离表面 5—6.5 μm 处有一个峰, 而相应的 $(\text{U}, \text{Gd})\text{O}_2$ 峰位于 4 μm 处^[37]. 0.5 MeV Xe 离子辐照 UO_2 , 在样品边缘位错区形成了二次晶粒, 较小的二次晶粒成为多边化的核心^[3]. α 衰变导致的结构损伤对核材料结构的化学和物理稳定性有重要的影响. 由于 CeO_2 与 UO_2 有相似的结构, 研究 CeO_2 的辐照损伤对研究 UO_2 的辐照损伤有帮助. 用 10 keV H^+ 辐照 CeO_2 后形成了尺寸从几个纳米到几十个纳米的层错. O 的 K 边和 Ce 的 M 边的结构和电子能量损失谱都发生了变化, 并且 O 的 K 边的变化比 Ce 的 M 边的变化明显, 说明与 O 联系的缺陷数量比与 U 联系的缺陷的数量多, 这种不同是 H^+ 辐照引起 CeO_2 结构和化学状态变化的重要因素^[14].

3 结束语

加速器-电子显微镜联机装置是研究载能离子和固体相互作用以及离子束材料改性的非常有力的实验工具,有助于弄清载能离子束与固体相互作用的一些基本过程和规律. 加速器-电子显微镜联机装置原位观察技术经过多年的发展,解决了并正在解决材料科学中的许多问题,包括一些用其它方法无法解决的问题. 随着材料科学的迅速发展以及实验技术的不断改进,加速器-电镜联机技术在远离平衡态物理和纳米材料科学等许多新领域将发挥更加重要的作用. 这一技术在不断走向成熟的过程中仍存在一些有待继续研究的领域. 例如,探讨级联碰撞过程中电子激发能量沉积的机制;研究级联碰撞冷却后位移保留下来的比例和形成团簇后点缺陷保留下来的比例;讨论级联碰撞导致的偏离或者局

域级联碰撞导致的偏离与理论预言是否符合,并定量分析其结果;研究间隙型位错环形成机制,并分析间隙团簇和位错环的运动性;探讨离子注入形成的纳米晶体的成核生长动力学机制;研究级联损伤在体材料中的影响等.

国外有些实验室利用现有的并不是很先进的小型加速器和一般的透射电镜,经过适当的改装,增加部分离子束引进电子显微镜样品室的辅助设备就建成了一套高水平的加速器-电子显微镜联机装置. 虽然我国许多高校和研究单位都有小型加速器和电子显微镜,但是到目前为止,还没有一台加速器-电子显微镜联机装置. 加速器-电子显微镜联机装置除了应用在物理和材料科学领域外,还可用于生命科学和化学等其它研究领域. 在我国建立一套加速器-电子显微镜联机装置很有必要,它将为我国的科学和技术进步做出贡献.

参 考 文 献:

- [1] Wang S X, Wang L M, Ewing R C, *et al.* Ion Beam-induced Amorphization in MgO-Al₂O₃-SiO₂. I. Experimental and Theoretical Basis[J]. *J Non-Cryst Solids*, 1998, **238**: 198.
- [2] Motta A T, Jr Paesano A, Birtcher R C, *et al.* Grain Growth in Zr-Fe Multilayers under in Situ Ion Irradiation[J]. *Nucl Instr and Meth*, 2001, **B175-177**: 521.
- [3] Lian J, Wang S X, Wang L M, *et al.* Radiation Damage and Nanocrystal Formation in Uranium-niobium Titanates[J]. *J Nucl Mater*, 2001, **297**: 89.
- [4] Pagano Jr L, Motta A T, Birtcher R C. The Formation of Bubbles in Zr Alloys under Kr Ion Irradiation[J]. *J Nucl Mater*, 1997, **244**: 295.
- [5] Furuya K, Ishikawa N, Mitsuishi K, *et al.* Imaging and Modeling of Nanocrystalline Xe in Al Containing Defects[J]. *Mater Sci and Eng*, 2000, **A285**: 85.
- [6] Kachurin G A, Ruault M, Ogutakovsky A K, *et al.* Light Particle Irradiation Effects in Si Nanocrystals[J]. *Nucl Instr and Meth*, 1999, **B147**: 356.
- [7] Aihara J, Hojou K, Furuno S, *et al.* Amorphization with Ion Irradiation and Recrystallization by Annealing of SiC Crystals[J]. *Nucl Instr and Meth*, 2000, **B166-147**: 379.
- [8] Kinoshita C, Abe H, Maeda S, *et al.* Effects of Concurrent Irradiation with Ions and Electrons on the Formation Process of Defect Clusters in Covalent and Ionic Crystals[J]. *J Nucl Mater*, 1995, **219**: 152.
- [9] Mitsuishi K, Song M, Yasuda H, *et al.* Effect of Ar Irradiation to Xe Precipitate in Al[J]. *Nucl Instr and Meth*, 2001, **B175-177**: 74.
- [10] Yasuda K, Kinoshita C, Kutsuwada M, *et al.* Nucleation and Growth Process of Defect Clusters in Copper During Helium Ion Irradiation[J]. *J Nucl Mater*, 1996, **233-237**: 1 051.
- [11] Ishino S. A Review of in Situ Observation of Defect Production with Energetic Heavy Ions[J]. *J Nucl Mater*, 1997, **251**: 225.
- [12] Wang L M. Applications of Advanced Electron Microscopy Techniques to the Studies of Radiation Effects in Ceramic Materials[J]. *Nucl Instr and Meth*, 1998, **B141**: 312.
- [13] Song M, Wang W, Chu F, *et al.* Structure and Chemical Changes of CeO₂ Irradiated with Hydrogen Ions[J]. *Nucl Instr and Meth*, 2002, **191**: 586.
- [14] 范湘军,王仁卉,彭有贵. 加速器-电子显微镜联机及其在材料科学研究中的应用[J]. *核物理动态*, 1991, **8(1)**: 30.
- [15] Ono K, Sakamoto R, Muroga T, *et al.* Dynamical Process of Defects Clustering in Nickel under Low Energy Hydrogen Ion Irradiation[J]. *J Nucl Mater*, 1996, **233-237**: 1 040.
- [16] Wang L M, Wang S X, Ewing R C, *et al.* Irradiation-induced Nanostructures[J]. *Mater Sci and Eng*, 2000, **A286**: 72.
- [17] Leo G, Ruault M O. In Situ Transmission Electron Microscopy Study of Dislocation Loops Induced by P Implantation in CdTe Single Crystals[J]. *J Appl Phys*, 1992, **73(5)**: 2 234.
- [18] Sonoda T, Abe H, Kinoshita C, *et al.* Formation and Growth Process of Defect Clusters in Magnesia under Ion Irradiation[J]. *Nucl Instr and Meth*, 1997, **B127-128**: 176.
- [19] Arakawa K, Imamura R, Ohota K, *et al.* Evolution of Defect

- Clusters in Pure Iron under Low-energy He⁺ Irradiation[J]. *J Appl Phys*, 2001, **89**(9), 4 752.
- [20] Yasuda K, Kinoshita C, Ohmura M, *et al.* Production and Stability of Dislocation Loops in an MgO-Al₂O₃ System under Concurrent Irradiation with Ions and Electrons[J]. *Nucl Instr and Meth*, 2000, **B166**—**167**, 107.
- [21] Ishino S, Sekimura N. Role of Charged Particle Irradiations in the Study of Radiation Damage Correlation[J]. *J Nucl Mater*, 1990, **174**, 158.
- [22] Wang L M, Birtcher R C. Radiation-induced Formation of Cavities in Amorphous Germanium [J]. *Appl Phys Lett*, 1989, **55**(24), 2 494.
- [23] Williams J S, Ridgway M C, Conway M J, *et al.* Interaction of Defects and Metals with Nanocavities in Silicon[J]. *Nucl Instr and Meth*, 2001, **B178**, 33.
- [24] Zhu X F, Williams J S, Conway M J, *et al.* Direct Observation of Irradiation-induced Nanocavity Shrinkage in Si[J]. *Appl Phys Lett*, 2001, **79**(21): 3 416.
- [25] Ruault M O, Fortuna F, Bernas H, *et al.* How Nanocavities in Amorphous Si Shrink under Ion Beam Irradiation: An in situ study[J]. *Appl Phys Lett*, 2002, **81**(14), 2 617.
- [26] Wang S X, Wang L M, Ewing R C. Ion Irradiation-induced Amorphization of CaAl₂O₄[J]. *Nucl Instr and Meth*, 1998, **B141**, 509.
- [27] Wang L M, Wang S X, Gong W L, *et al.* Temperature Dependence of Kr Ion-induced Amorphization of Mica Minerals [J]. *Nucl Instr and Meth*, 1998, **B141**, 501; *Mater*, 1998, **258**—**263**, 1 856.
- [28] Meldrum A, White C W, Keppens V, *et al.* Irradiation-induced Amorphization of Cd₂Nb₂O₇ Pyrochlore[J]. *Phys Rev*, 2001, **B63**, 104109.
- [29] Jiang C Z, Fan X J. In Situ TEM Observation of Silver Nanocrystals in an Ag-implanted SiO₂ Film[J]. *Surf Coat Technol*, 2000, **131**, 330.
- [30] Jiang C Z. In Situ TEM Observation of the Formation of Nickel Nanocrystals in Ni-implanted Amorphous SiO₂ Thin Films[J]. *J Mater Sci Lett*, 2001, **20**(14), 1 335.
- [31] Palard M, Ruault M O, Kaitasov O, *et al.* Irradiation Induced Growth of CoSi₂ Precipitates in Si at 650 °C: An in situ study[J]. *Nucl Instr and Meth*, 1996, **B120**, 212.
- [32] Song M, Mitsuishi K, Furuya K. Morphologies of Metastable Inert Gas Precipitates in Aluminum Observed with in Situ HRTEM[J]. *Mater Sci and Eng*, 2001, **A304**—**306**, 135.
- [33] Mitsuishi K, Song M, Furuya K, *et al.* Observation of Atomic Processes in Xe Nanocrystals Embedded in Al under 1 MeV Electron Irradiation[J]. *Nucl Instr and Meth*, 1999, **B148**, 184.
- [34] Iwakiri H, Yasunaga K, Morishita K, *et al.* Microstructural Evolution in Tungsten during Low-energy Helium Ion Irradiation[J]. *J Nucl Mater*, 2000, **283**—**287**, 1 134.
- [35] Donnelly S E, Bortcher R C, Templier C. The Effect of Dense and Dilute Collision Cascades on Helium Bubbles in Metals[J]. *Nucl Instr and Meth*, 1995, **B106**, 583.
- [36] Igarashi S, Muto S, Tanabe T, *et al.* In-situ Observation of Surface Blistering in Silicon by Deuterium and Helium Ion Irradiation[J]. *Surf Coat Technol*, 2002, **158**—**159**, 421.
- [37] Hojou K, Furuno S, Kushita K N, *et al.* Depth Profiles of Damage Accumulation in UO₂ and (U,Gd)O₂ Pellets Irradiated with 100 MeV Iodine Ions[J]. *J Nucl Mater*, 1999, **273**, 302.

Progress of Accelerator and Electron Microscope Link in Study of Material Science*

JIANG Chang-zhong, REN Feng, ZHANG Li, SHI Ying, FAN Xiang-jun
(School of Physics and Technology, Wuhan University, Wuhan 430072, China)

Abstract: Ion-beam or electron-beam irradiation will lead to the change of material microstructure. By the use of facilities composed of an electron microscope and ion accelerator(s), the microstructure evolution in material can be in-situ studied during the irradiation and following annealing processes. The facilities have been widely used to study many kinds of materials, e. g. metal, alloy, ceramic materials and semiconductor, in the past twenty years. In this paper the development of the Accelerator and Electron Microscope Link as well as the studies by using such facilities will be reviewed.

Key words: in situ; electron microscope; irradiation effect; microstructure evolution

* Foundation Item: National Natural Science Foundation of China (10005005, 10275049)