

利用 TDPAC 方法研究电子对金属的辐射损伤

倪新伯 徐金龙

(中国科学院上海原子核研究所)

关键词 微分扰动角关联 金属的辐射损伤 电子辐照

一、引言

核辐射能使固体晶格损伤,引起其电磁学、光学及力学参量的改变。在某些金属表面通过带电粒子辐射或离子注入,可提高材料的抗腐蚀性能、抗氧化性能和耐磨性能。一些半导体材料,通过重离子或中子辐射,可产生一种新的杂质元素,这种方法成为制备半导体器件的新工艺。所以对辐射损伤及其变性的机理研究很有价值。现在国际上正采用各种方法,如扰动角关联、电子显微镜、沟道效应、穆斯堡尔效应、中子散射及正电子湮没等方法,企图从不同的侧面来揭示辐射损伤的微观特性。

迄今为止,主要集中于重离子的辐射损伤研究^[1-5],有关电子的辐射损伤研究甚少^[6,7]。随着核工程及宇航事业的发展,对电子辐射损伤的研究将会提出更多的要求。本实验用核反应及核反应反冲注入法制备了以¹¹¹In为探针核的Ag、Ni样品。这些样品通过不同通量的1MeV能量的电子束辐射,然后利用TDPAC方法研究电子对金属的辐射损伤。

二、实验方法

1. 样品制备

利用核反应及核反应反冲注入法制备样品。用我所回旋加速器加速的31.2MeV的 α 束,通过¹⁰⁹Ag(α , 2n)¹¹¹In核反应,产生可供TDPAC测量用的放射性核¹¹¹In。 α 束轰击20 μ m厚的Ag箔,在Ag箔中产生¹¹¹In,其中大部分¹¹¹In离子反冲一定距离后静止在Ag箔中,而小部分¹¹¹In离子反冲出Ag箔,打进厚5 μ m的Ni箔中。 α 束流强8 μ A,束流积分80 μ Ah。此时Ag及Ni箔中的¹¹¹In量都已达到可作扰动角关联测量的要求。

在 α 束轰击过程中,Ag、Ni组成的靶子系统保持着较高的温度,使 α 及重离子反冲造成的辐射损伤因退火而消失^[8]。

2. 样品辐照

用我所1MeV的电子加速器对上述Ag、Ni样品进行辐照。电子加速器的瞬时通量为 $3 \times 10^{15} e^-/cm^2 \cdot s$ 。在电子轰击Ag、Ni样品的过程中用干冰加酒精冷却,使样品保持在0℃以下。

电子束辐射Ag、Ni样品各二片,电子束积分通量分别为

Ag: 一片 $2.5 \times 10^{17} e^-/cm^2$, 另一片 $10^{18} e^-/cm^2$

Ni: 一片 $5 \times 10^{17} e^-/cm^2$, 另一片 $10^{18} e^-/cm^2$

3. TDPAC 测量

实验装置同文献[9]所示。¹¹¹In通过电子俘获衰变到¹¹¹Cd的激发态,然后通过第一激发态级联放出 γ_1 和 γ_2 ,能量分别为173keV和247keV。

待测样品放在圆心,二个分别测量 γ_1 和 γ_2 的NaI(Tl)探头分别固定在夹角 $\theta = \frac{3}{4}\pi$ 的二个转臂上。在样品上加一个方向垂直于探测器所在平面的外磁场,而强度对Ag样品用13000Gs;对Ni样品用1500Gs,实验在室温中进行,通过磁场翻转法测量了微分扰动角关联函数 $W(\frac{3}{4}\pi, \pm H, t)$ 。

在垂直于两探头所在平面的磁场的作用下,若无其它外场干扰,微分扰动角关联函数可用下式表示:

$$W(\theta, \pm H, t) = 1 + \sum_K A_K P_K(\cos(\theta \mp \omega_L t)) \quad (1)$$

式中, $+H$ 和 $-H$ 分别表示外加磁场,方向向上和向下。考虑到 γ 级联跃迁中间核态有一定的寿命,所以实验中测到的是

$$C(\theta, \pm H, t) = e^{-\lambda t} \{1 + \sum_K A_K P_K[\cos(\theta \mp \omega_L t)]\} \quad (2)$$

式中, λ 是中间核态的衰变常数, ω_L 是拉莫尔进动频率。

为了消除指数衰减系数 $e^{-\lambda t}$, 而且在 $^{111}\text{Cd} \left(\frac{7^+}{2} \rightarrow \frac{5^+}{2} \rightarrow \frac{1^+}{2} \right)$ 级联, 其 $A_1 \ll A_2$, 故可构造如下函数:

$$R(t) = \frac{C(\theta, +H, t) - C(\theta, -H, t)}{C(\theta, +H, t) + C(\theta, -H, t) - 2B} = \left[\frac{3A_2}{4 + A_2} \right] \sin 2\omega_L t, \quad (3)$$

式中, B 为偶然符合计数, $\theta = \frac{3}{4}\pi$, A_2 的理论值 $-0.18^{[10]}$ 。 $R(t)$ 是本实验测量的最终值。从表示式 (3) 可见, $R(t)$ 是一个调制幅度和周期固定不变的时间函数。

三、实验结果与讨论

我们对 Ag、Ni 二组样品, 通过不同电子通量辐射后, 在室温中分别作了微分扰动角关联测量, 每组样品分未经电子辐射、小通量及大通量电子辐射三种, 测量结果见图 1 和图 2。

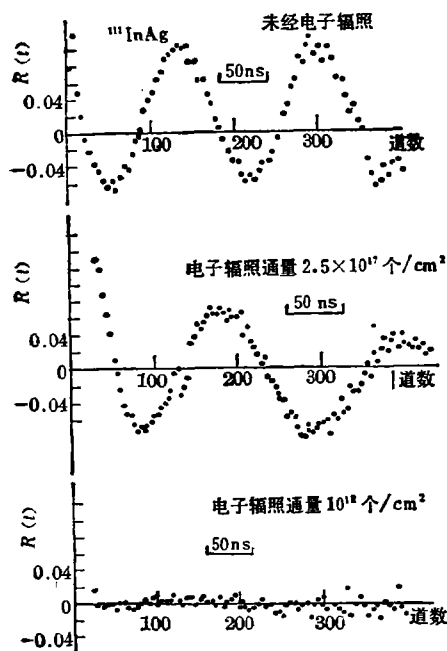


图 1 不同电子辐照通量条件下 Ag 样品的微分扰动角关联谱

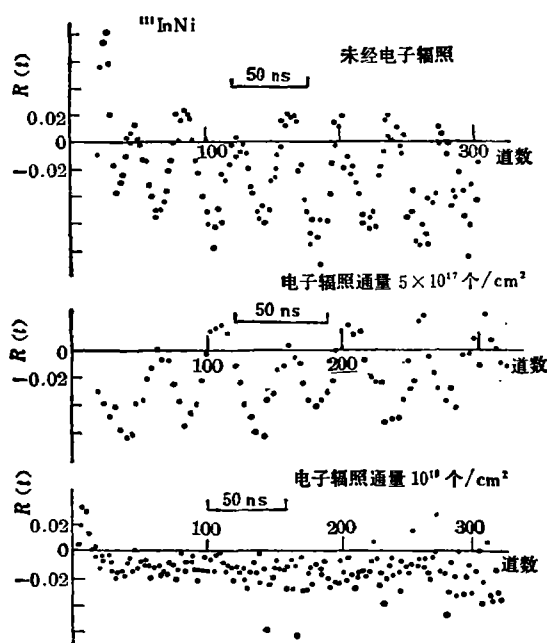


图 2 不同电子辐照通量条件下 Ni 样品的微分扰动角关联谱

由图 1 和图 2 二组实验曲线可定性表明, $R(t)$ 不能用表示式 (3) 来描写。虽然 $R(t)$ 调制频率 ω_L 不受电子辐射的影响, 但调制幅度不再是固定不变的常数, 当电子辐射通量为 $10^{18} \text{e}^-/\text{cm}^2$ 时, Ag、Ni 二样品 $R(t)$ 的调制幅度显著减小。另外, 当小通量电子 (如 $2.5 \times 10^{17} \text{e}^-/\text{cm}^2$) 辐射时, 在 Ag 样品的 $R(t) \sim$ 曲线上有指数衰减现象。所以描写我们实验的曲线 $R(t)$ 不能采用表示式 (3) 中通常采用的系数 $\frac{3A_2}{4 + A_2}$, 而要用一指数 $\exp(-(t - t_0)/\tau_{re1})$ 乘一个有效振幅 A_2^{eff} 来代替, 于是 $R(t)$ 似乎也可用重离子辐射损伤的一般式来表示^[2]:

$$R(t) = A_2^{eff} \exp(-(t - t_0)/\tau_{re1}) \sin 2\omega_L (t - t_0) + b \quad (4)$$

式中, t_0 和 b 为自由参量; A_2^{eff} 和 τ_{re1} 是与辐射损伤有关的参量, $A_2^{eff} \leq A_2$, 是一个常数。

当 1MeV 能量的电子轰击固体时, 足以使原子离开原来的晶格位置而变成填隙子, 它与晶格的空位构成普朗克对 (Frankel Pair)^[11], 也就是辐射损伤产生的缺陷。

我们的实验结果表明, 电子辐射损伤产生的缺陷可分成二部分: 一部分处于稳定状态, 由表示式 (4) 中的 A_2^{eff} 参量表示; 另一部分处于非平衡扩散状态, 由表示式 (4) 中的 $\exp(-(t - t_0)/\tau_{re1})$ 参量表示。

$R(t)$ 与时间无关的衰减参量 A_2^{eff} , 是由处于稳定状态的缺陷产生的轴对称电场梯度与 ^{111}Cd 第一激发态

电四极矩相互作用的结果。在我们的实验中,当电子通量为 $10^{18}\text{e}^-/\text{cm}^2$ 时,在 Ag、Ni 二种不同的金属样品中,这种相互作用都很强, A_2^{eff} 几乎减小到零。说明在这样通量条件下电子辐射损伤产生的缺陷密度迅速提高,而且大量的探针核被处于稳定状态的缺陷所俘获。

$R(t)$ 随时间阻尼现象,由表示式(4)中的 $\exp(-(t-t_0)/\tau_{re1})$ 表示。它是处于非平衡态的缺陷不断扩散引起的波动电场梯度与 ^{111}Cd 第一激发态电四极矩相互作用的结果。在我们的实验中,只有在辐射电子通量为 $2.5 \times 10^{17}\text{e}^-/\text{cm}^2$ 的 Ag 样品中看到,而且随时间衰减也比较缓慢。在 Ni 样品中没有看到。说明这类电子辐射损伤组份对不同的金属是不一样的,而且其弛豫时间 τ_{re1} 也比较小,因而这部分电子辐射损伤造成的缺陷的电四极相互作用,似乎可用 Abragam 和 Pound 的定理来描写^[12], $\tau_{re1} \sim \langle \omega_s^2 \rangle \exp(-E_m/KT)$ 。其中 $\langle \omega_s^2 \rangle$ 为波动电场梯度的均方相互作用频率, E_m 是与缺陷结构有关的缺陷迁移能。

本实验仅是一些初步的实验结果,由此得出的结论和分析也是很初步的。但可以表明,通常利用外加磁场研究重离子辐射损伤的 TDPAC 方法也可适用于电子辐射损伤引起的电四极相互作用,方法比较灵敏,而且有利于和重离子辐射损伤情况和机理相比较。在本实验的基础上,我们将继续用外加磁场的 TDPAC 方法,进行系统地测量各种辐射剂量条件下重离子和电子对金属的辐射损伤,待积累了较多的实验数据后,再进行必要的理论计算并作一定的定量分析,通过电子与重离子对金属辐射损伤的共性和差异,进一步研究辐射损伤的机理。

参 考 文 献

- [1] R. E. Shroy et al., *Hyperfine Interactions*, 4, 738 (1978).
- [2] P. Heubes et al., *Hyperfine Interactions*, 4, 746 (1978).
- [3] R. Böhm et al., *Hyperfine Interactions*, 4, 758 (1978).
- [4] J. Christiansen et al., *Hyperfine Interactions*, 4, 768 (1978).
- [5] R. Sielemann, *Hyperfine Interactions*, 10, 701 (1981).
- [6] H. Rinneberg and W. Semmler, *Physics Letter*, 66A, 57 (1978).
- [7] R. Butt and W. Semmler, *Physics Letter*, 80A, 29 (1980).
- [8] 倪新伯,核电子学与探测技术,1,4,31(1981)。
- [9] 扰动角关联组,核技术,1,31(1979)。
- [10] R. M. Steffen, *Phys. Rev.*, 103, 116 (1956).
- [11] Douglas S. Billington and James H. Crawford, *Radiation damage in solids*, 1961.
- [12] A. Abragam and R. V. Pound, *Phys. Rev.*, 92, 943 (1953).

(1983年1月25日收到)

(上接第41页)

表 1

辐照衬底温度(℃)	100	150	200	250	300
辐照后少子寿命 $\tau_s(\mu\text{s})$	5	5	5	3.5	3
300℃50小时退火 后寿命 $\tau_{s1}(\mu\text{s})$	10	9	8	6	5
退火速率常数 $K(\text{h}^{-1})$	0.020	0.016	0.013	0.013	0.012

表 2

$\tau_s(\mu\text{s})$	$\tau_{s1}(\mu\text{s})$	$T(\text{K})$	$\tau_{s1}(\mu\text{s})$	$t(\text{h})$	$K(\text{h}^{-1})$
24	5	573	6	6	0.0394
24	5	523	6.5	144	0.0024

式中, k 为波尔兹曼常数, h 为普朗克常数。对不同退火温度 T_1 , T_2 有对应的关系式,经数学推导后得激活能计算公式

$$U = kT_1T_2/(T_1 - T_2) \cdot \ln K_1T_2/K_2T \quad (6)$$

对原始寿命为 $24\mu\text{s}$ 的二极管在室温辐照后进行不同温度退火处理的结果列于表 2。利用表 2 数据和(6)式计算激活能 $U=1.4\text{eV}$, 此值与 Evwasaye 等的结果一致。因此我们用 1.3MeV 电子辐照区熔硅所引入的缺陷主要是双空位。其能级为 0.43eV 。其次, $E_c-0.18\text{eV}$ 是氧空位, 由于区熔硅含氧量低, 故其浓度低; $E_v+0.49\text{eV}$ 是与杂质铝有关的铝空位, 这是由于 p^+ 层采用硼铝扩散工艺所致。

四、结 论

电子辐照能精确有效地控制硅器件少子寿命, 并主要形成双空位缺陷, 经辐照的器件能长期稳定地工作。

参 考 文 献

- [1] R. O. Carlson et al., *IEEE Trans. Electron Devices*, ED24, 8, 1103 (1977).
- [2] C. K. Chu et al., *ISA Annual*, 1975, p.180.
- [3] A. O. Evwasaye, *J. Appl. Phys.*, 43, 3776 (1976).
- [4] L. C. Kimerliry, *Radiation effects in semiconductor*, 1976. p.221.

(1981年10月15日收到)

minority carrier lifetime will decrease with the increasing of radiation dose. The induced defects by radiation are mainly dual vacancies, and the irradiated devices work stably and reliably.

Electric field method used for measuring thorium content

Lu Dongchu Lu Zongliang Chen Zhiheng

(00060 unit, P.L.A.)

Hu Guangde Zhang Renbo Yan Changyun

(Shanghai Institute of Nuclear Research, Academia Sinica)

According to the principle of radon detection in electric field, ThA as well as RaA are both ionized particles with positive charge in its original state, so that they are able to collect within the electric field, Radon meter type FDC-80 was used to measure thorium content. Theoretical calculation and the condition in practical use were studied. The experimental results indicate the method has a greater rapidity and a higher accuracy as compared with both static meter and balloon method.

Application of TDPAC method to the study of radiation damage induced by electrons in metal

Ni Xinbo Xu Jinlong

(Shanghai Institute of Nuclear Research, Academia Sinica)

The TDPAC (time differential perturbed angular correlation) method is used to investigate the radiation damage induced by electrons in metal material Ag and Ni. The energy and flux of electron are 1 MeV and $2.5 \times 10^{17} \sim 10^{18}$ electron/cm² respectively. Two kinds of defects were found. One of them is stable, and the other is in nonequilibrium diffusion process and depends on the total dose of radiation.

Mössbauer spectrum study of the ancient pottery of Henan Longshan culture period (2000 B.C.)

Pan Xianjia Sun Zhongtian Jin Guoqiao

(Zhengzhou University)

Four pieces of ancient potsherd have been analysed by their Mössbauer spectrum, three of them are the remains of the Longshan culture and the fourth one may be the Peilikong culture but it is in dispute. The aging effect has been observed and the original firing temperature of a ware which belongs to Longshan culture late period is confirmed.