

文章编号:1005-4642(2022)03-0017-05

基于正电子湮没技术的材料空位型缺陷行为研究

袁 悦¹, 王汉卿¹, 王诗维¹, 程 龙¹, 张 鹏², 曹兴忠², 金 硕¹, 吕广宏¹

(1. 北京航空航天大学 物理学院, 北京 100191;

2. 中国科学院高能物理研究所 多学科研究中心, 北京 100049)

摘 要:正电子湮没技术能够快速、精确、无损地对材料内部微观缺陷进行探测. 将慢正电子束多普勒展宽能谱仪引入实验教学, 选取核聚变堆壁材料金属钨为测试对象, 调节正电子束能量, 采集正电子在钨中湮没产生的 γ 光子信号. 通过对 γ 光子多普勒展宽能谱进行处理分析, 获得辐照前后样品近表面空位型缺陷数量随深度的变化规律, 使学生掌握基于正电子湮没技术研究材料缺陷行为的实验技能.

关键词:正电子湮没技术; γ 光子; 多普勒展宽谱; 空位型缺陷; 深度分布

中图分类号: TL341

文献标识码: A

DOI: 10.19655/j.cnki.1005-4642.2022.03.003

正电子湮没技术是先进的材料微观结构无损探测技术, 可对原子尺度缺陷(如空位、空位团簇等)进行快速精准探测, 弥补了透射电镜、X 射线衍射等其他技术对原子尺度缺陷难以观测的不足^[1]. 正电子湮没技术包括多普勒展宽能谱仪、角关联谱仪、寿命谱仪等. 上世纪 80 年代, 慢正电子束流技术的出现, 将正电子湮没技术的应用进一步拓展到材料表面和界面的研究中^[2-4].

材料缺陷对其物理、化学、力学等性能具有重要影响, 材料缺陷探测表征技术在材料性能评估中占据重要位置. 在研究生为主的近代物理实验本研一体化专题中, 增设正电子湮没技术, 将其应用到核聚变堆壁材料金属钨的辐照缺陷行为研究中, 有助于学生以前沿科学与国家需求的视角, 学习和掌握该技术在材料微观缺陷研究中的应用.

1 实验原理

1.1 正电子与材料的相互作用

正电子在材料中的扩散、捕获和湮没过程示意图如图 1 所示. 正电子进入材料后, 其动能在几 ps 内降至低能量状态(约为 0.025 eV), 即热

化过程. 由于正电子与原子核存在库仑排斥作用, 因此热化的正电子在扩散过程中易被捕获在原子间的空间内, 尤其是空位型缺陷中, 从而与周围的电子发生湮没, 释放出 2 个 γ 光子. 湮没过程遵循动量守恒与能量守恒, 正负电子对总质量对应的能量将转变为 2 个 γ 光子的动能.

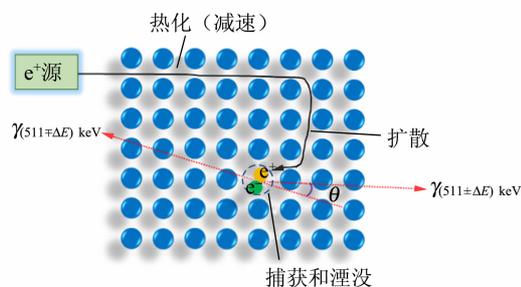


图 1 正电子在材料中的扩散、捕获、湮没过程示意图

若正负电子对初始状态静止, 湮没释放的 2 个 γ 光子速度大小相等、方向相反, 每个 γ 光子能量为 511 keV. 由于材料中的电子具有初始动量, 因此 2 个 γ 光子发射方向夹角不再是 180° , 且能量将相对于 511 keV 发生多普勒能移. 电子初

收稿日期: 2021-12-06; 修改日期: 2022-01-02

基金项目: 高等学校力学课程教改项目; 北京航空航天大学 2019—2022 年教育教学改革培育项目

作者简介: 袁 悦(1988—), 女, 湖北潜江人, 北京航空航天大学物理学院副教授, 博士, 研究方向为金属材料缺陷物理. E-mail: yueyuan@buaa.edu.cn

通讯作者: 金 硕(1976—), 女, 辽宁鞍山人, 北京航空航天大学物理学院教授, 博士, 研究方向为金属材料缺陷物理. E-mail: jinshuo@buaa.edu.cn

吕广宏(1969—), 男, 辽宁沈阳人, 北京航空航天大学物理学院教授, 博士, 研究方向为金属材料缺陷物理. E-mail: lgh@buaa.edu.cn

始动量越高, γ 光子多普勒能移越显著^[5].

1.2 慢正电子束多普勒展宽能谱仪的工作原理

通过测量 γ 光子的多普勒展宽能谱, 可以获得与电子动量相关的材料微观结构信息, 如图 2 所示.

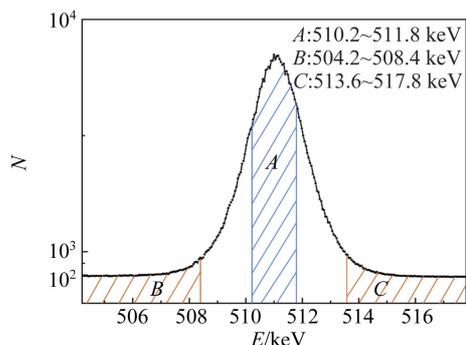


图 2 γ 光子多普勒展宽能谱

多普勒展宽能谱峰值位置对应 511 keV, 谱线中心区域(A 区域)能移小, 对应较低动量电子的湮没; 谱线两翼区域(B/C 区域)能移大, 对应较高动量电子的湮没. 为便于对比不同谱线的特征差异, 引入 S (shape) 参数^[1], 其定义为 A 区域

面积(510.2~511.8 keV)与谱线下的积分总面积(504.2~517.8 keV)的比值.

金属材料中不同环境中的电子动量不同. 如在空位型缺陷中, 主要存在的是原子周围游离的价电子, 平均动量较低. 若材料中空位型缺陷数量增多, 相应的 S 升高^[6-8]. 结合慢正电子束入射能量可调的特点^[9], 可获得材料表面至 μm 量级深度范围内的 S , 即空位型缺陷数量的变化规律.

2 实验方法

2.1 实验装置

慢正电子束多普勒展宽实验装置及流程如图 3 所示.

a. 正电子源衰变产生的快正电子经慢化体慢化后, 再经静电加速管加速, 获得单色且能量连续可调的慢正电子束.

b. 正电子束垂直入射测试样品, 湮没产生的 γ 光子被高纯 Ge 半导体探测器探测, 产生电信号, 经过主放大器放大并输入多道分析器处理.

c. 存入计算机, 通过分析 γ 光子多普勒展宽能谱获得 S 参数.

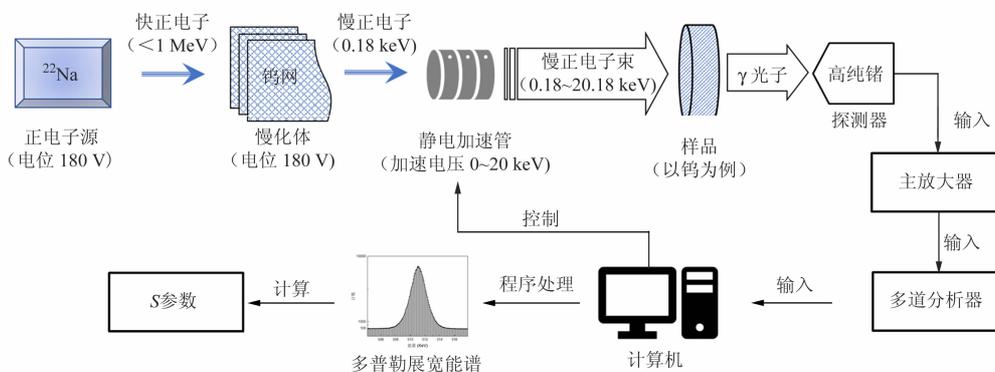


图 3 慢正电子束多普勒展宽实验装置示意图

2.2 实验样品

金属钨作为核聚变堆中的壁材料, 将经受高剂量载能粒子辐照, 产生大量辐照缺陷, 影响其服役性能. 钨中的辐照缺陷行为一直是核聚变材料领域关注的热点^[10]. 面向核聚变能国家需求, 选取钨为测试对象, 利用慢正电子束表征并分析辐照前后钨近表面空位型缺陷的变化.

样品 A: 商业轧制钨, 纯度 $>99.95\%$, 形变量 80% , 致密度 $>99\%$, 样品尺寸 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 1\text{ mm}$. 样品经过机械研磨与抛光, 获得平整光洁

的表面;

样品 B: 利用高能 Cu^{2+} 对初始钨样品进行辐照, 离子能量为 1 MeV , 辐照剂量为 $7.5 \times 10^{18}\text{ m}^{-2}$;

样品 C: 在样品 B 的基础上, 进行氦(D)等离子体辐照, 氦离子能量为 40 eV , 辐照剂量 $1 \times 10^{26}\text{ m}^{-2}$.

2.3 实验内容

实验内容分为基础实验与拓展实验 2 部分, 面向不同教学需求开展分层次教学, 促进学生综合实验实践能力和分析解决问题能力的提升.

基础实验需完成样品 A 和 B 的测试,主要面向研究生和部分本科生. 教师先讲授实验原理与操作方法(1 学时),然后学生在专职实验员的指导下进行测试(3 学时). 学生基于实验操作与数据分析,可掌握正电子湮没技术的基本原理和操作方法,得到并分析高能 Cu^{2+} 辐照引起的缺陷数量随深度的变化规律.

拓展实验需完成样品 C 的测试,主要针对学有余力的研究生,学生提前与专职实验员预约测试时间. 学生通过对比分析不同辐照因素对样品缺陷行为的影响,深入学习和理解正电子湮没技术的应用.

2.4 实验过程

1) 安装实验样品. 样品室结构如图 4 所示.

a. 关闭闸阀 2, 打开闸阀 1, 操作送样杆将样品台移动至预抽室, 关闭闸阀 1;

b. 预抽室内充入氮气, 打开预抽室腔室门, 将样品粘在样品台上;

c. 关闭预抽室;

d. 先后打开机械泵和分子泵, 约等待 1 h, 真空度降至 1×10^{-5} Pa 以下, 打开闸阀 1;

e. 操作送样杆, 将样品台送入主样品室, 关闭闸阀 1;

f. 开启闸阀 2, 准备测量.

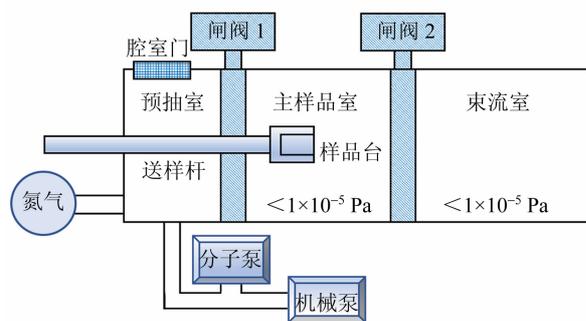


图4 样品室结构示意图

2) 调节加速电压, 采集 γ 光子多普勒展宽能谱. 通过计算机指令, 根据测量精度需求设置加速电压大小与步长. 对于金属钨样品, 加速电压为 $0 \sim 8$ kV 时, 步长设为 0.5 kV; 加速电压为 $8 \sim 20$ kV 时, 步长设为 1 kV; 共计 28 个能量点. 每个能量点采集 1 个 γ 光子能量-计数图(图 5), 其中峰值处对应 511 keV. 当 $504.2 \sim 517.8$ keV 能量区间的总计数 N_{sum} 累积至 5×10^5 时, 视为该谱线测试完成.

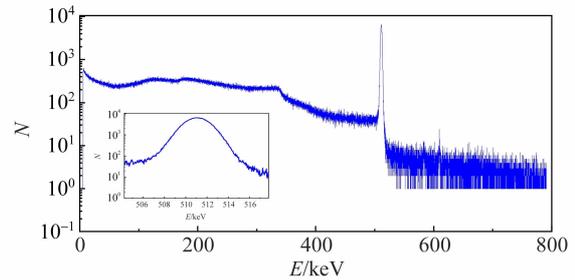


图5 实测 γ 光子多普勒展宽能谱图

3) 谱线去噪, 计算每个谱线对应的 S 并统计误差. 采谱过程中存在噪声信号, 如图 5 左右两侧低能区与高能区部分. 扣除噪声信号后, 截取 $504.2 \sim 517.8$ keV 区间能谱, 计算 S . 结合总计数 N_{sum} 计算 S 的统计误差, $E_s = S [N_{\text{sum}}^{-0.5} + (SN_{\text{sum}})^{-0.5}]$.

4) 绘制 S 随深度 d 的变化曲线. 正电子注入深度 R 可依据 $R = (40/\rho) E^{1.6}$ 计算, 其中 ρ 为材料密度, E 为正电子能量. 将 28 个正电子能量转化为注入深度, 结合对应的 S 与统计误差 E_s , 绘制 $S-d$ 曲线.

3 实验结果分析

3.1 基础实验

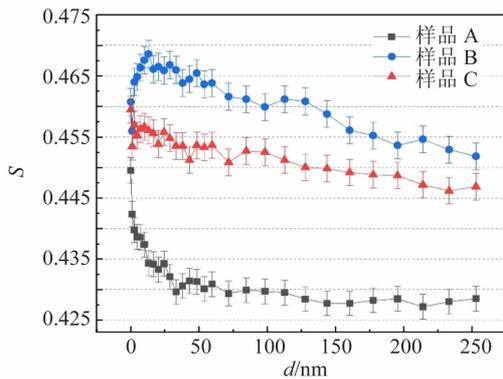
如图 6(a) 所示, 对于样品 A, $0 \sim 30$ nm 深度范围内 S 相对较高, 表明辐照前钨样品浅表层的空位型缺陷相对较多, 这与样品表面的机械抛光处理有关. 样品 A 和 B 在整个测试深度范围内 S 显著增加, 表明高能 Cu^{2+} 辐照导致钨中形成了大量空位型缺陷.

为更好地分析高能 Cu^{2+} 辐照因素对空位型缺陷数量深度分布的影响, 将同一深度样品 B 和 A 的 S 作差, 获得 ΔS 随 d 的变化曲线, 如图 6(b) 所示. ΔS 在 $0 \sim 50$ nm 深度范围内急剧增加并达到峰值, 随后缓慢减小. 可见, 空位型缺陷的增加呈峰值分布, 且受表面效应的影响, 越靠近表面, 空位型缺陷的形成越困难.

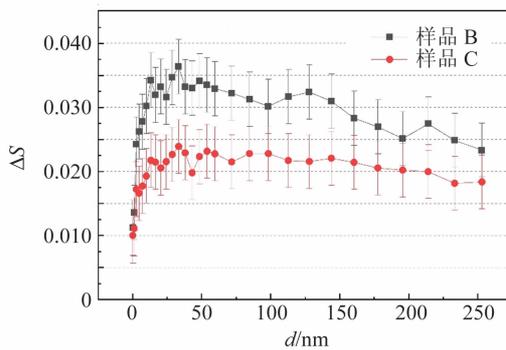
3.2 拓展实验

拓展实验中有多个样品(包括样品 C)可供学生选择, 学生也可以根据自己的研究兴趣, 主动设计拟测试的材料种类和辐照参量. 教师在评定实验设计的合理性和可行性后, 准备相应的样品供学生测试分析.

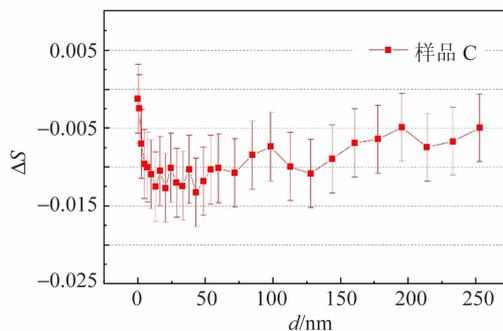
此处以学生选择率最高的样品 C 为例,简要说明测试结果. 结合图 6(a)~(c)可以看出,高能 Cu^{2+} 辐照后的氩等离子体辐照有降低 S 的效果,但无法使 S 降低至辐照前的初始水平. 实验结果表明,低能氩等离子体辐照可以一定程度“修复”高能 Cu^{2+} 辐照对钨造成的损伤,但无法完全“恢复”.



(a) 不同钨样品 S 随 d 的变化规律



(b) 相对于样品 A 的 ΔS 随 d 的变化规律



(c) 相对于样品 B 的 ΔS 随 d 的变化规律

图 6 不同钨样品 S 和 ΔS 随 d 的变化规律

4 结束语

面向核聚变能国家需求,选取核聚变堆壁材

料金属钨作为测试样品,将慢正电子束多普勒展宽能谱仪引入近代物理实验课程,使学生掌握正电子湮没技术表征材料缺陷行为的实验技能,并推广应用到其他材料缺陷表征中. 基于测试原理、实验操作、数据处理和结果分析等实验教学过程,强化学生对力学、光学、热学等基础物理知识的深入理解. 学生分析讨论空位型缺陷变化规律时,需要结合一定的材料物理基础知识,教学中教师应注重培养学生的多学科交叉的学习能力. 基于基础实验与拓展实验的分层次教学设计,可充分激发学生的主观能动性,提升学生的综合实验实践能力,培养学生的科学研究素养与探索精神.

参考文献:

- [1] 豪托贾维 P. 正电子湮没技术[M]. 何元金, 郁伟中, 译. 北京: 科学出版社, 1983.
- [2] 陆家和, 陈长彦. 表面分析技术[M]. 北京: 电子工业出版社, 1987.
- [3] Ogorodnikova O V, Dubov L Y, Stepanov S V, et al. Annealing of radiation-induced defects in tungsten: Positron annihilation spectroscopy study [J]. Journal of Nuclear Materials, 2019, 517: 148-151.
- [4] 朱特, 曹兴忠. 正电子湮没谱学在金属材料氢/氦行为研究中的应用[J]. 物理学报, 2020, 69(17): 177801.
- [5] 郁伟中. 正电子物理及其应用[M]. 北京: 科学出版社, 2003: 12-14.
- [6] Wang S W, Zhu X L, Cheng L, et al. Effect of heavy ion pre-irradiation on blistering and deuterium retention in tungsten exposed to high-fluence deuterium plasma [J]. Journal of Nuclear Materials, 2018, 508: 395-402.
- [7] He W D, Zhang P Y, Liu X, et al. Defects in H/He neutral beam irradiated potassium doped tungsten alloy by positron annihilation technique [J]. Acta Physica Sinica, 2021, 70(16): 167803.
- [8] Wang Z, Gao L, Zhu X L, et al. Effect of rhenium on defects evolution behavior in tungsten under irradiation [J]. Nuclear Fusion, 2021, 61(3): 036037.
- [9] 郁伟中, 袁佳平. 正电子慢化体的研究和进展[J]. 物理, 2001, 30: 95-100.
- [10] Mayer M, Moller S, Rubel M, et al. Ion beam analysis of fusion plasma-facing materials and components: Facilities and research challenges [J]. Nuclear Fusion, 2020, 60(2): 025001.

Study on vacancy-type defects behavior in materials by positron annihilation techniques

YUAN Yue¹, WANG Han-qing¹, WANG Shi-wei¹, CHENG Long¹, ZHANG Peng²,
CAO Xing-zhong², JIN Shuo¹, LU Guang-hong¹

(1. School of Physics, Beihang University, Beijing 100191, China;

2. Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Positron annihilation techniques can detect microscopic defects in materials accurately and nondestructively. Doppler broadening spectrometer with an energy-variable slow positron beam was introduced into experimental teaching. Tungsten, a plasma-facing material in fusion reactors, was chosen as the test object. By adjusting the acceleration voltage of the positron beam, and collecting the signal of annihilation photons when positrons annihilate in tungsten, Doppler broadening of photon energy spectra corresponding to different depths was measured. Through the analysis of experimental data, the depth profiles of vacancy-type defects in the near surface of tungsten before and after irradiation could be obtained. Consequently, students could master the experimental skills in studying defects behavior in materials based on positron annihilation techniques.

Key words: positron annihilation techniques; γ photon; Doppler broadening spectroscopy; vacancy-type defect; depth profile

[责任编辑:任德香]

(上接 16 页)

[21] Zhang Y W, Bae I T, Sun K, et al. Damage profile and ion distribution of slow heavy ions in compounds [J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 105:104901.

[22] Chang Y Q, Zhang Y W, Zhu Z H, et al. MeV Au ion irradiation in silicon and nanocrystalline zirconia film deposited on silicon substrate [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 2012, 286:173-179.

Measuring film thickness and impurity distribution by backscattering method

XU Chuan, FU En-gang, LOU Jian-ling

(State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology,
School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: Backscattering spectrometry is a quantitative and heavy elements sensitive ion beam analysis technique for analyzing solid materials in the near-surface region. The basic principle, the experimental device and specific experimental process of backscattering spectrometry were described. The application of SIMNRA software in backscattering spectrometry was introduced. Taken specific experiments, the method for determining the composition and thickness of the film sample, as well as the impurity concentration and depth distribution of the ion-implanted doped sample were described. The simulation results were in good agreement with the experimental data by using SIMNRA software to simulate the backscattering spectrum. Experiments showed that backscattering spectrometry can accurately measure the thickness of thin film and the distribution of impurities in the doped samples.

Key words: backscattering spectrometry; SIMNRA software; depth resolution; implantation fluence; depth profiling

[责任编辑:任德香]