

快中子引起的背向溅射*

叶邦角 周先意 韩荣典

(中国科学技术大学近代物理系 合肥 230026)

春日井好己 池田裕二郎

(日本原子能研究院反应堆工程部, 日本茨城)

摘要 描述了用实验方法测量快中子引起的背向溅射, 测量了 Mg、Al、Sc、V、Fe、Co、Cu、Zr、Au 和 316 型不锈钢等 10 种材料的背向溅射产额, 并与正向产额进行了比较, 发现背向和正向溅射产额的比值与核反应的类型有关. 本实验的结果同其它小组的结果进行了比较, 并用溅射理论对实验结果进行了解释.

关键词 快中子 溅射产额 背向溅射

1 引言

近二十多年来, 随着反应堆技术的发展与核能源在世界范围内的广泛应用, 材料的辐照性能受到了极大的关注, 发达国家在材料的辐照性能测试上投入大量的人力与物力, 甚至建立专用的反应堆, 如日本的材料测试反应堆 (JMTR) 和国际核聚变强中子辐照设施 (IFMIF). 美国和日本还成立了材料测试联合实验小组.

能量为 14MeV 的快中子辐照将在材料体内与表面产生各种效应, 快中子溅射就是其中之一. 溅射将使表面层松弛而加快腐蚀剥离过程^[1], 这将严重影响材料在反应堆中的使用寿命, 此外聚变堆壁材料上的溅射产生的粒子进入热等离子体中还将降低等离子体温度. 从 70 年代开始, 一些研究小组对快中子溅射现象进行了实验研究和理论分析, 如美国的 Battelle Memorial 研究所^[2]、美国 Argonne 国立研究所^[3]、德国的 Max-Planck 等离子体研究所^[4]等, 但由于实验上的困难, 所测量的核数还不多, 大部分的测量都集中在 Nb^[5,6] 和 Au^[7,8] 上. 不同小组的实验结果差别较大, 有的达到几个数量级, 一些实验结果仅仅给出上限^[2]. 绝大部分测量的是正向溅射, 也有一些小组给出背向溅射^[9]. 此外, 一些实验小组还发现了微小团簇的溅射现象^[10]. 快中子溅射理论主要从离子溅射理论^[11] 移植而来, 理论计算与实验结果也有较大的差别. 随着新型反应堆如快中子增殖堆、聚变裂变混合堆的发展和建立, 特别是聚变能技术的发展如正在设计的国际热核实验反应堆

1998-06-26收稿, 1998-09-17收修改稿

* 中国科学院和中国科学技术大学留学回国基金资助

(ITER) 及即将进入概念设计的稳态托克马克反应堆 (SSTR), 现有中子溅射的实验数据已远远不能满足设计需要。

从 1996 年开始, 作者在日本原子能研究院的聚变中子实验室 (FNS) 对快中子引起的溅射现象进行了系统的实验测量, 发现了中子溅射正向产额的系统性规律^[12]。本文主要讨论快中子引起的背向溅射现象。

2 实验测量

对快中子引起的核反应, 反冲核将获得的一定的动能, 如果核反应发生在近表面, 则反冲核将有可能到达表面并从表面发射出来, 形成溅射。快中子溅射产额 S 就是溅射出的反冲核数量与入射中子数之比。如果反冲核溅射方向与中子入射方向相同就称为正向溅射, 反之, 就称为背向溅射。对快中子引起的溅射, 背向溅射产额要远小于正向溅射产额。由于受到反应截面和中子通量限制, 测量快中子引起的背向溅射产额就更为困难。

测量快中子引起的背向溅射的实验是在日本原子能研究院聚变中子源实验室 (FNS) 完成的。能量为 14.9 MeV 的快中子由中子产生器产生。在旋转靶室, 中子强度约为 $2 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$ 。我们用活化法测量溅射产额, 即用收集膜来收集从样品表面溅射出的粒子, 通过测量收集膜和样品的活性来确定溅射出粒子的数量。收集膜采用厚度为 0.013 mm 特制塑料薄膜, 实验在空气中完成。对每一种样品, 收集膜置于样品的两边, 用于同时测量正向与背向溅射产额, 收集膜与样品的距离分别为 0.2、0.5、1.0、2.0、3.0 和 5.0 mm, 如图 1 所示。从不同距离得到的溅射产额可外推得到样品表面的溅射产额。实验时, 所选的核反应应有较大的截面和产物有合适的半衰期, 此外, 由于溅射主要产生于表面层, 因此所选材料应具有光滑表面。我们选择了 10 种材料, 即 Mg、Al、Sc、V、Fe、Co、Cu、Zr、Au 和 SS316 型不锈钢。样品的面积为 $25 \times 25 \text{ mm}^2$, 厚度从 0.005 mm 到 0.25 mm 视材料而不同。中子辐照时间视所测量核反应产物的半衰期而定, 除 $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ 核反应仅辐照 10 分钟外, 其余辐照时间为 7—30 小时。经中子辐照后的样品和收集膜的活性由 5 个高纯锗探测器分别测量, 探测器的效率经仔细刻度。图 2 表明了实验得到的 $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ 核反应在不同

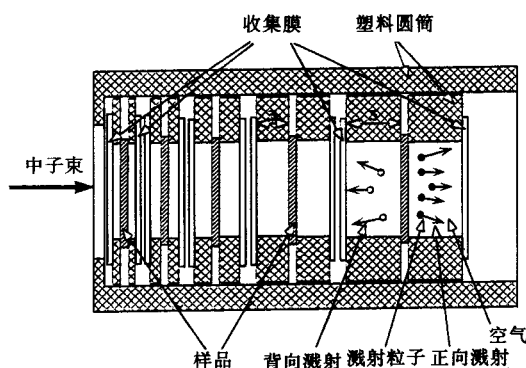


图1 测量快中子溅射产额的实验装置图

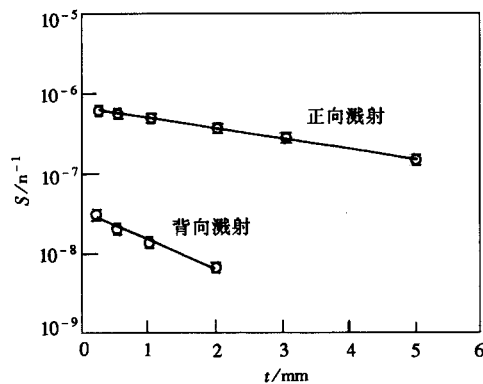


图2 $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ 核反应在不同距离处的背向溅射产额和正向溅射产额

距离处得到的背向溅射产额,由实验数据外推可得到样品表面处的背向溅射产额,作为比较图中还给出了不同距离处的正向溅射产额.实验共测量了(n, 2n)、(n, α)和(n, p)等3种类型的11种核反应的背向溅射产额,见表1所示.实验误差主要来源于统计误差,对大部分结果,实验误差在20%范围内.

表1 快中子引起的背向溅射产额

核反应	反应截面 (mb)	背向溅射产额 S_b / n^{-1}
$^{24}\text{Mg}(n, p) ^{24}\text{Na}$	168	$5.47 \times 10^{-09} \pm 7.01 \times 10^{-10}$
$^{27}\text{Al}(n, p) ^{27}\text{Mg}$	62.3	$3.42 \times 10^{-09} \pm 6.80 \times 10^{-10}$
$^{56}\text{Fe}(n, p) ^{56}\text{Mn}$	111	$6.11 \times 10^{-10} \pm 1.90 \times 10^{-10}$
$\text{SS316}(n, p) ^{56}\text{Mn}$	111	$3.64 \times 10^{-10} \pm 7.27 \times 10^{-11}$
$^{27}\text{Al}(n, \alpha) ^{24}\text{Na}$	114	$3.27 \times 10^{-08} \pm 4.80 \times 10^{-09}$
$^{45}\text{Sc}(n, \alpha) ^{42}\text{K}$	53.3	$1.92 \times 10^{-08} \pm 3.00 \times 10^{-09}$
$^{51}\text{V}(n, \alpha) ^{48}\text{Sc}$	16.9	$1.89 \times 10^{-09} \pm 3.00 \times 10^{-10}$
$^{59}\text{Co}(n, \alpha) ^{56}\text{Mn}$	32.3	$1.92 \times 10^{-09} \pm 2.50 \times 10^{-10}$
$^{65}\text{Cu}(n, 2n) ^{64}\text{Cu}$	961	$6.10 \times 10^{-09} \pm 1.10 \times 10^{-09}$
$^{90}\text{Zr}(n, 2n) ^{89}\text{Zr}$	832	$1.02 \times 10^{-09} \pm 2.80 \times 10^{-10}$
$^{197}\text{Au}(n, 2n) ^{196g}\text{Au}$	1894	$1.58 \times 10^{-10} \pm 4.50 \times 10^{-11}$

3 分析与讨论

为了进一步分析快中子引起的背向溅射现象,把所测量的背向产额 S_b 同正向产额 S_f 进行比较,比值 S_b/S_f 从0.2到0.005左右,视不同反应而不同(表2).作为比较,同时把Harling^[9]的结果也列于表中.由实验结果可知,对于不同的反应,比值 S_b/S_f 变化较大.对(n, α)核反应,比值 S_b/S_f 的变化范围分别为0.2—0.05;而对(n, p)和(n, 2n)核反应,相应的值为0.042—0.0056.即相对于正向溅射而言,(n, α)核反应引起的背向溅射产额要大于(n, p)和(n, 2n)核反应所引起的背向溅射产额.这可从下面溅射理论得到定性的解释.

快中子溅射理论大多是从Sigmund^[11]等人的离子溅射理论的基础上移植并加以发展而得到.中子在金属表面引起的溅射理论是基于级联碰撞理论,按照该理论可以得到比

$$\text{值 } S_b/S_f \text{ 如下: } \quad \frac{S_b}{S_f} = \frac{\langle R_b \rangle R_N}{\langle R_f \rangle} \quad (1)$$

其中 R_N 是能量反射系数,对快中子大约为0.05, $\langle R_f \rangle$ 和 $\langle R_b \rangle$ 分别是反冲粒子的正向和背向平均射程.按照Schjott^[13]的工作,能量为 T 的反冲核的平均射程可写成:

$$\langle R(T) \rangle \left(\frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2} \right) = \begin{cases} C_1 A_2 \left(\frac{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}}{Z_1 Z_2} T (\text{keV}) \right)^{2/3}, & \varepsilon < 0.1, \\ C_1 A_2 \frac{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}}{Z_1 Z_2} T (\text{keV}), & 0.5 < \varepsilon < 10, \end{cases} \quad (2)$$

表2 背向溅射产额与正向溅射产额的比值

核反应	Q值	正向反冲	背向反冲	S_b / S_f	S_b / S_f	S_b / S_f
	(MeV)	动能 (keV)	动能 (keV)	现结果	Harling	现计算
$^{27}\text{Al}(n, \alpha) ^{24}\text{Na}$	-3.13	1390	770	0.05	—	0.042
$^{45}\text{Sc}(n, \alpha) ^{42}\text{K}$	-0.4	1290	750	0.20	—	0.043
$^{51}\text{V}(n, \alpha) ^{48}\text{Sc}$	-2.06	1220	680	0.091	0.059	0.042
$^{54}\text{Fe}(n, \alpha) ^{51}\text{Cr}$	0.848	1240	740	—	0.067	0.045
$^{62}\text{Ni}(n, \alpha) ^{59}\text{Fe}$	-0.441	1190	690	—	0.167	0.043
$^{50}\text{Ti}(n, \alpha) ^{47}\text{Ca}$	-3.437	1210	650	—	0.10	0.042
$^{63}\text{Cu}(n, \alpha) ^{60}\text{Co}$	1.715	1220	740	—	0.091	0.045
$^{59}\text{Co}(n, \alpha) ^{56}\text{Mn}$	0.33	1220	720	0.053	—	0.043
$^{24}\text{Mg}(n, p) ^{24}\text{Na}$	-4.73	1170	—	0.006	—	0
$^{27}\text{Al}(n, p) ^{27}\text{Mg}$	-1.83	1180	—	0.012	—	0
$^{56}\text{Fe}(n, p) ^{56}\text{Mn}$	-2.91	980	—	0.010	—	0
$^{54}\text{Fe}(n, p) ^{54}\text{Mn}$	0.089	1020	40	—	0.042	0.007
$\text{SS316}(n, p) ^{56}\text{Mn}$	-2.91	980	—	0.010	—	0
$^{58}\text{Ni}(n, p) ^{58}\text{Co}$	0.392	1000	82	—	0.011	0.012
$^{92}\text{Mo}(n, p) ^{92\text{m}}\text{Nb}$	0.274	900	75	—	0.020	0.012
$^{52}\text{Cr}(n, 2n) ^{51}\text{Cr}$	-12.04	910	—	—	0.007	0
$^{55}\text{Mn}(n, 2n) ^{54}\text{Mn}$	-10.22	950	—	—	0.007	0
$\text{SS316}(n, 2n) ^{51}\text{Cr}$	-12.04	910	—	—	0.010	0
$^{65}\text{Cu}(n, 2n) ^{64}\text{Cu}$	-9.91	920	—	0.034	—	0
$^{90}\text{Zr}(n, 2n) ^{89}\text{Zr}$	-11.98	800	—	0.018	—	0
$^{93}\text{Nb}(n, 2n) ^{92\text{m}}\text{Nb}$	-8.82	870	—	—	0.007	0
$^{100}\text{Mo}(n, 2n) ^{99}\text{Mo}$	-8.30	860	—	—	0.006	0
$^{197}\text{Au}(n, 2n) ^{196\text{g}}\text{Au}$	-8.07	730	—	0.014	0.027	0

式中 ε 为约化能量^[13], 其中 A_1 、 A_2 和 Z_1 、 Z_2 分别是靶核和反冲核的质量数与原子序数, C_1 和 C_2 是系数可由文献 [13] 中的图 4 和图 7 得到。

由核反应动力学, 对快中子引起的核反应, 反冲核的动能为:

$$T = \left\{ \frac{(A_2 E_n)^{1/2}}{A_{\text{CN}}} \cos \theta \pm \left(\frac{A_2 E_n}{A_{\text{CN}}^2} \cos^2 \theta + \frac{A_{\text{LP}} Q + E_n (A_{\text{LP}} - 1)}{A_{\text{CN}}} \right)^{1/2} \right\}^2, \quad (3)$$

式中 A_{CN} 、 A_2 和 A_{LP} 分别是复合核、反冲核和发射轻核的质量数, Q 是核反应 Q 值. 反冲核正向和背向发射的动能相应于 θ 取 0 和 π . 计算结果表明, 对 (n, α) 核反应, 反冲核的背向发射动能大约是正向发射动能的 3/5. 而对 (n, p) 核反应, 除了 Q 值为正的少数几种核反应具有极小的背向发射动能外, 对 Q 值为负的核反应无背向发射动能; 对所有的 $(n, 2n)$ 核反应, 由于 Q 值均为负, 亦无背向发射动能. 计算结果同样列于表 2 中. 对 (n, α) 核反应, 计算的 S_b / S_f 约为 0.043, 比实验值 0.2—0.05 要小, 这是因为实际过程要加上中子的二次碰撞产生的背向溅射. 同样道理, 对 (n, p) 和 $(n, 2n)$ 核反应, 背向发射动能很小或没有, 因

此理论计算的 S_b/S_f 为 0 或很小, 要比 (n, α) 核反应相应的值小得多. 但同样由于中子的二次碰撞和级联过程, 仍有一小部分反冲核会从背向溅射出来, 这部分的值贡献大约为百分之几, 实验测量这两种反应的 S_b/S_f 值在 0.03—0.006 范围, 这一部分可认为是由中子的二次碰撞和级联过程所引起; 另一部分是由背向溅射的反冲核不完全是 180° 而贡献, 因为实验时由于中子不可能都是以 0° 入射样品, 而是有一个角分布.

参 考 文 献

- 1 Matera R, Federici G. J. Nuclear Materials, 1996, 233:17—25
- 2 Harling O K, Thomas M T, Brodzinski R L et al. J. Appl. Phys., 1977, 48:4315
- 3 Kirk M K, Conner R A, Wozniak D G et al. Phys. Rev., 1979, B19:87
- 4 Behrisch R. Nucl. Instr. Methods, 1976, 132:293
- 5 Jenkins L H, Smith G J, Wendelken J F et al. J. Nucl. Mater., 1976, 63:438
- 6 Meisenheimer R G. J. Vac. Sci. Technol., 1977, 14:560
- 7 Harling O K, Thomas M T, Brodzinski R L et al. Phys. Rev. Lett., 1977, 34:1340
- 8 Kirk M A, Conner R A, Wozniak D G et al. Phys. Rev., 1979, B19:87
- 9 Harling O K, Thomas M T, Brodzinski R L et al. J. Appl. Phys., 1977, 48:4328
- 10 Kaminsky M, Peavey J, Das S. Phys. Rev. Lett., 1974, 32:599
- 11 Sigmund P. Phys. Rev., 1969, 184:383
- 12 Ye B J, Kasugai Y, Ikeda Y et al. JAERI-Research, 1997, 97—082
- 13 Schiott H E. Radiation Effects, 1970, 6:107

Backward Sputtering Induced by Fast Neutron*

Ye Bangjiao Zhou Xianyi Han Rongdian

(Department of Modern Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026)

Kasugai Yoshimi Ikeda Yujiro

(Department of Reactor Engineering, Japan Atomic Energy Research Institute, Ibaraki, Japan)

Abstract An experimental method of measuring backward sputtering induced by fast neutron is described. Backward sputtering yields of 10 materials of Mg, Al, Sc, V, Fe, Co, Cu, Zr, Au and type 316 stainless steel are measured and compared with forward sputtering yields. It is found that the ratios of backward to forward sputtering yields depend on the kinds of reactions. The present results are compared with other experimental results and explained using sputtering theory.

Key words fast neutron, sputtering yields, backward sputtering

Received 26 June 1998, Revised 17, September 1998

* Research Sponsored by the Funds of Returning Scientists of CAS and USTC