

BCC 金属 Nb 的重离子辐射损伤研究

朱升云 郑胜男 李安利
黄汉臣 李东洪 许国基

(中国原子能科学研究院, 北京, 102413)

采用 81 MeV 碳离子辐照, 模拟中子注量为 $10^{23}/\text{cm}^2$ 的堆中子在 Nb 中产生的辐射损伤, 用时间微分扰动角关联和正电子湮没二种方法研究辐射损伤及其高温退火效应。实验发现经注量 $2.5 \times 10^{16}/\text{cm}^2$ 的碳离子辐照后, 在 BCC 金属 Nb 中产生单空位和双空位二种缺陷。随退火温度升高, 双空位分解, 单空位的总浓度逐步减小, 经过 1058 K 退火后, 在 Nb 中由辐射损伤造成的缺陷消失。

关键词 辐射损伤, 正电子湮没, 时间微分扰动角关联。

一、引言

在快堆、聚变堆和核电站中堆材料长期受到中子照射, 产生辐射损伤。累积中子注量达一定程度后, 严重的辐射损伤引起堆材料的性质变化, 例如肿胀、脆裂、蠕变等。如不及时更换, 可能造成反应堆事故。因而堆材料的辐射损伤研究及材料抗辐照性能改进的研究具有重要意义。体心立方(BCC)金属 Nb 是一种重要的堆用高温材料, 在反应堆内, Nb 受到累积中子注量为 $10^{23}\text{n}/\text{cm}^2$ 引起的辐射损伤效应至今尚不清楚, 而对 Nb 的缺陷仅有的一些研究, 也主要集中在低温区。因此, 研究这样高中子注量时 Nb 的辐射损伤, 对快堆、聚变堆和核电站反应堆是很有实用价值的。但是现有的中子源都不能满足实验模拟研究的要求。重离子产生的辐射损伤率可比中子的高七个数量级。随着重离子加速器的发展, 国外都采用重离子辐射模拟来研究堆中子引起的辐射损伤。我们用串列加速器的高能碳离子轰击 Nb, 然后用正电子湮没谱学(PAS)和时间微分扰动角关联(TDPAC)两种方法进行辐射损伤的微观机理研究。以这两种方法从不同角度对同一现象进行观察、对比和分析, 可以对产生的辐射损伤有更全面、更深入的了解。此外, 辐照后 Nb 产生的辐射损伤, 还进行了从室温到 1058 K 退火效应的研究, 从而探讨所产生缺陷的动态特性。

二、实验

1. 样品

样品纯度是 99.99% 的 $(10 \times 10 \times 1.5) \text{mm}^3$ 的 Nb 片, 其表面抛光呈镜面光泽。在辐照前, Nb 样品放在 $1.33 \times 10^{-3} \text{Pa}$ 的真空中加热到 1473 K 进行退火和去气, 使 Nb 的晶格结构重晶

化,并消除可能存在的氢对缺陷测量的影响。

2. 辐 照

辐照是在HI-13 串列加速器上进行,用 81.2 MeV 碳离子轰击 Nb 样品。辐照靶室如图 1 所示^[1]。辐照是在室温下进行,碳离子束斑为 $\phi 8 \text{ mm}$,辐照总注量为 $2.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ 。碳离子辐照过程中,同时由核反应 $^{93}\text{Nb} (^{12}\text{C}, 5n)^{100}\text{Ag} \xrightarrow[2.3 \text{ min}]{\beta^+, \text{EC}} ^{100}\text{Pd} \xrightarrow[3.6 \text{ d}]{\text{EC}} ^{100}\text{Rh}$ 产生扰动角关联探针核 $^{100}\text{Pd}/^{100}\text{Rh}$ 。

3. PAS 和 TDPAC 测量

Nb 样品经碳离子束辐照以后,在室温下进行 PAS 和 TDPAC 测量,然后在 $1.33 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ 的真空条件下退火。退火温度从室温到 1058 K,共有 8 个温度点,每个温度点退火后都进行 PAS 测量,在 573,963 和 1058 K 三个温度点退火后进行 TDPAC 测量。

PAS 测量采用 BaF_2 晶体正电子湮没寿命谱仪^[2]。正电子源是 $35 \mu\text{Ci}$ (13 kBq) 的 ^{22}Na 源,它由 $^{22}\text{NaCl}$ 沉积在 1 mg/cm^2 铝箔上制成,源斑为 $\phi 6 \text{ mm}$ 。两块都经 2.5×10^{16} 碳离子/ cm^2 照射的 Nb 样品和放射源形成夹心结构。 BaF_2 晶体寿命谱仪主要由耦合到 XP2020Q 光电倍增管的两块 $\phi 30 \times 20 \text{ mm}$ 的国产 BaF_2 晶体和快-快符合电路组成。对 ^{60}Co γ 射线,谱仪的时间分辨率为 210 ps。每个寿命谱记录 1×10^6 个计数。寿命谱采用 POSFIT 程序拟合,得到正电子湮没寿命,除源成份外,用二个寿命能很好地拟合实验测量的寿命谱,其拟合协方差小于 1.50。

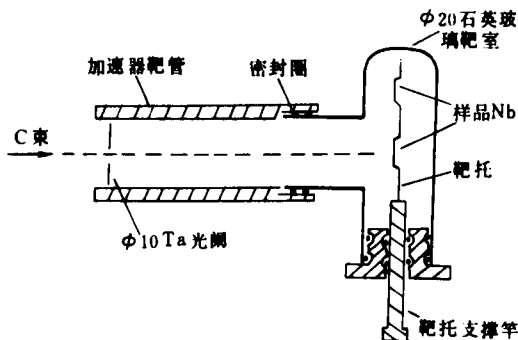


图 1 串列加速器辐照靶室示意图

Fig. 1 The sketch of the irradiation target chamber with tandem accelerator

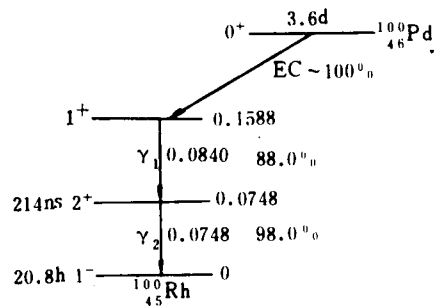


图 2 探针核 ^{100}Rh 的衰变纲图

Fig. 2 The decay scheme of the probe nuclide ^{100}Rh

TDPAC 测量采用高分辨的高纯锗探测器组成的 TDPAC 谱仪^[3]。碳轰击 ^{93}Nb 产生探针核 ^{100}Rh ,其母核 ^{100}Pd 的半衰期为 3.6 d。 ^{100}Rh 的衰变纲图如图 2 所示^[4]。NaI(Tl)探测器不能将相差 9 keV 的 γ_1 (84 keV) 和 γ_2 (74.8 keV) 分开,所以采用对 ^{60}Co γ 射线能量分辨为 2.0 keV 的 HPGc 探测器代替,其探测效率约 25%。尽管时间性能较差,对 ^{60}Co γ 射线谱仪的时间分辨率为 10 ns。由于 ^{100}Rh 中间态的寿命为 309 ns,10 ns 的时间分辨是足够的。对经过 ^{100}Rh 中间态的 γ_1 和 γ_2 作时间微分扰动角关联测量,测量时样品置于互为 90° 对称放置的 HPGc 探测平面的中心。在数据处理时,将扣除偶然符合本底的 γ 符合时间谱形成自旋转动函数 $R(t)$ ^[3]。 $R(t)$ 的理论解析式为:

$$\begin{cases} R(t) = A_2 G_2(t) \\ G_2(t) = \sum_{i=1}^2 f_i \left(\sum_{n=0}^4 S_{2n} \cos(n\omega_0' t) e^{-n\delta_1 \omega_0' t} + f_b \sum_{n=0}^4 S_{2n} e^{-\frac{n}{2} \delta_2 t} + f_a \right) \end{cases}$$

式中 A_2 是各向异性因子, f_i 是探针核直接捕获第 i 个缺陷的相对成份, f_b 是探针核受到离其较远的缺陷的宽分布相互作用的成份, f_a 为未受缺陷扰动的成份, f_i, f_b 和 f_a 满足 $\sum f_i + f_b + f_a = 1$, ω_0' 是相应的四极相互作用基频, 采用洛仑兹分布, 其宽度为 δ_1 , δ_1 是宽分布相互作用的宽度, S_{2n} 系数由文献[5] 给出. 采用最小二乘法, 用理论解析式拟合实验曲线, 可以获得有关的电四极超精细相互作用参数: A_2, ω_0', δ_1 和 δ_2 . 由于 $A_1 \ll A_2$, 在数据处理时不考虑包含 A_1 以上的项.

三、结果和讨论

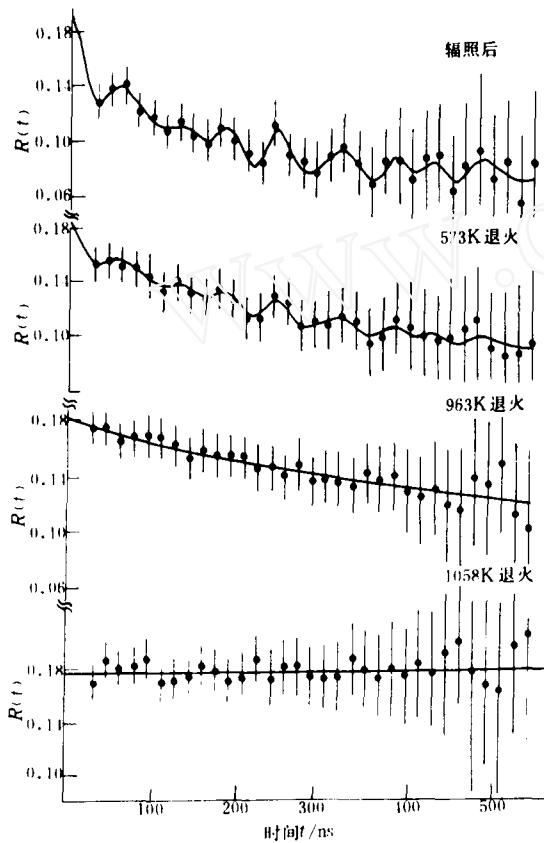


图 3 不同温度退火后 ^{100}Rh 在Nb中的自旋转动函数 $R(t)$

Fig. 3 The spin rotation function $R(t)$ of ^{100}Rh in Nb at different annealing temperature

◇——为实验点; ——为拟合曲线。

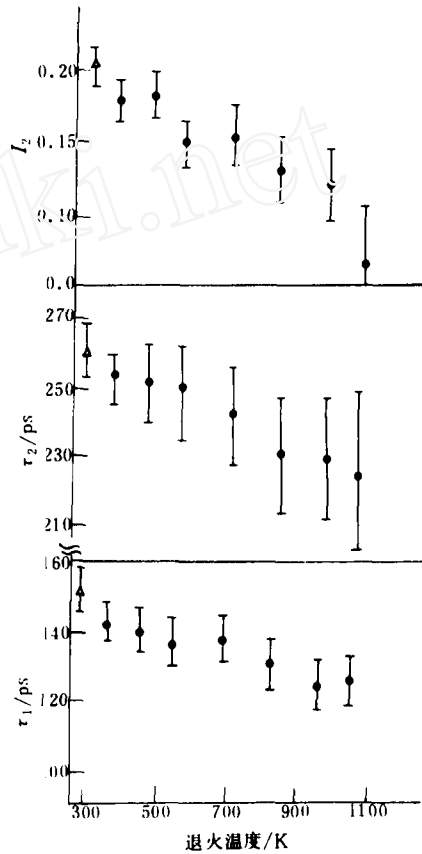


图 4 Nb中正电子湮没寿命 τ_1, τ_2 和相对强度 I_2 随退火温度的变化

Fig. 4 Temperature dependence of the positron annihilation lifetimes τ_1, τ_2 and the relative intensity I_2

辐照后和经过三种温度退火后, 在室温下作了 TDPAC 测量. 图 3 画出了自旋转动函数谱 $R(t)$ 和用解析式最小二乘法拟合的结果. 由图可知, 辐照后探针核捕获二种缺陷, $R(t)$ 可用二

个恒定的四极相互作用频率 $\omega_0^{(1)} = 26$ MHz 和 $\omega_0^{(2)} = 31$ MHz 很好地拟合。它们的相对成份 $f_1 = f_2 = 9\%$ 。经过 573 K 退火后,这两种四极相互作用依然存在,但是相对成份减小, $f_1 = f_2 = 4\%$ 。经过 963 K 退火,这两种恒定的四极相互作用消失,表明探针核不再直接捕获缺陷,但是由图可见,探针核还受到较远处缺陷的微弱扰动。经过 1058 K 退火,辐照产生的缺陷消失, $R(t)$ 是一条水平直线。

样品在辐照前后及在高到 1058 K 范围内每一个温度点退火后,都在室温下进行 PAS 测量,辐照前它只有一个寿命成份,其值 $\tau_1 = 125.0(3.6)$ ps。P. Hantojärvi^[6]的测量值为 122 ps。在室温下经 2.5×10^{16} 碳离子/cm² 照射后,正电子湮没寿命测量发现,除源成份外,寿命谱分裂成二种成份: $\tau_1 = 150.9(2.4)$ ps 和 $\tau_2 = 261.5(11.0)$ ps, τ_2 的相对成份为 21%。 τ_1 相应于自由正电子和被单空位捕获的正电子湮没寿命的混合。在 Nb 中自由正电子湮没寿命为 125 ps。 τ_2 相应于小空位团。图 4 是 τ_1 、 τ_2 和 I_2 随退火温度的变化。从图中可以清楚地看到,随退火温度升高, τ_1 、 τ_2 和 I_2 都逐渐减小,这意味着退火温度升高,空位团不断分解,而且 Nb 中单空位的浓度逐渐减少和消失。

重离子辐照在 Nb 中产生单空位,空位迁移和聚合形成空位团。TDPAC 测量表明,辐照后 Nb 中存在二种结构的缺陷,由于实验用的是多晶样品,不能测出缺陷取向,因而不能直接给出缺陷结构,但是从测量的四极相互作用频率可以判断,探针核捕获的是单空位和双空位。PAS 测量表明,辐照后有二个湮没寿命成份,即存在二种组态的缺陷: τ_1 与单空位相关; τ_2 值介于双空位和三空位之间。综合二种方法的结果,辐照后 Nb 中有二种组态的缺陷:单空位和双空位。经过 573 K 退火后,它们依然存在;经 800 K 退火,绝大部分缺陷消失;在 1058 K 退火后, Nb 中基本上不存在缺陷。

理论上认为温度为 600~1000 K 时辐射最易产生缺陷,形成肿胀。在我们的实验中辐照是在室温下进行的,产生的缺陷经退火后,基本上都消失。到底 Nb 在 600~1000 K 辐照是否会产生产生肿胀?这应由辐照缺陷产生率和自退火缺陷消失率来决定。为此,在 600~1000 K 温区 Nb 辐射损伤重离子辐照模拟研究正在考虑之中。

参 考 文 献

- [1] 朱升云等,原子核物理,6(2),188(1984)。
- [2] 朱升云等,中国原子能科学研究院年报,37(1988)。
- [3] 朱升云等,核技术,10(12),4(1987)。
- [4] Lederer, C. M. et al., Table of Isotopes, 7 th. ed., John Wiley & Son Inc., 1978.
- [5] Dafni, E. et al., At. Data Nucl. Data Table, 23, 315 (1979).
- [6] Hautojarvi, P., mat. Res. Soc. Symp. Proc., 82, 3(1987).

(编辑部收到日期:1989年10月6日)

STUDY OF HEAVY ION INDUCED RADIATION DAMAGE IN BCC METAL Nb

ZHU SHENGYUN ZHENG SHENGNAN LI ANLI
HUANG HANCHEN LI DONGHONG XU GUOJI

(China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275, Beijing, 102413)

ABSTRACT

Radiation damage in Nb produced by reactor neutrons of 10^{23} n/cm² fluence is simulated by 81 MeV carbon ion irradiation. The induced radiation damage and its thermal annealing behaviour are studied by both time differential perturbed angular correlation and positron annihilation techniques. The results show the existence of mono- and divacancies in BCC metal Nb following the 81 MeV carbon irradiation with a total dose of 2.5×10^{16} cm⁻². As annealing temperature increases, divacancies are dissociated and total concentration of monovacancies decreases. After annealing at 1058 K, defects in Nb resulted from radiation damage completely disappear.

Key words Radiation damage, Positron annihilation, Time differential perturbed angular correlation.