

106-110

快重离子辐照非晶态合金引起的塑性形变研究进展*

刘昌龙 侯明东 王志光
(中国科学院近代物理研究所 兰州 730000)

TG139.8

A 摘要 简单介绍了国内外关于快重离子低温辐照非晶态合金引起的各向异性的塑性形变研究新进展,并对该领域今后的研究方向作了展望.

关键词 重离子辐照 非晶态合金 塑性形变
分类号 TL99

低温辐照

1 引言

快重离子(能量 $\geq 1\text{MeV/u}$)穿过固体材料主要通过和靶电子非弹性碰撞损失能量,即电子能损的方式,而通过弹性碰撞的方式损失的能量(核能损)与之相比要小得多.快重离子辐照固体材料研究电子能损引起的损伤效应是国际上研究的热点领域,在各种各样的固体材料中已经观测到了电子能损引起的多种效应,如金属中缺陷的产生和退火、合金中径迹形成和非晶化效应、非晶态固体中各向异性的塑性形变等^[1].这些效应的发现和研究,开辟了离子与固体相互作用的新领域.

Klaumunzer S 等人首先报道了快重离子引起的非晶态合金各向异性的塑性形变^[2].样品在垂直于束流方向的尺寸生长,而在平行于束流方向的尺寸收缩,样品的体积几乎不变.在垂直照射的几何条件下,达到稳态生长时,非晶态样品尺寸的相对变化随辐照剂量 Φt 的增加表现出如下的线性关系^[2].

$$\frac{\Delta L}{L_0} = \frac{\Delta b}{b_0} = -\frac{1}{2} \frac{\Delta h}{h_0} = A(\Phi t - B) \quad (1)$$

式中, L_0 、 b_0 和 h_0 分别为未辐照样品的长度、宽度和厚度, ΔL 、 Δb 和 Δh 则为辐照后样品长度、宽度和厚度的变化. A 和 B 为两个拟合参数,具有明确的物理含义: A 为生长率,表示每个入射离子引起的样品表面积的变化,它是描述塑性形变最重要的参数之一. B 为表

观潜伏剂量,只有当辐照剂量 Φt 大于 B 时,才能测量到样品尺寸的变化.生长率 A 与多种因素有关,除材料本身的性质以外,如微观结构、宏观物理性能等,它还依赖于辐照温度和离子在材料中的能量沉积(电子能损 S_e 和核能损 S_n),而且,温度越低,材料中沉积的能量越多,生长率就越大.生长率与能损间存在以下的经验关系^[3]

$$A = a\langle P \rangle \exp(\beta \langle S_e \rangle) \quad (2)$$

式中, a 、 β 为拟合参数,它们依赖于材料的性质和温度, $\langle P \rangle$ 为仅考虑核弹性碰撞的平均原子位移截面, $\langle S_e \rangle$ 为离子在样品中的平均电子能损.可见,电子能损的作用是主要的.这种塑性形变与 S_e 相关性的发现,动摇了人们对电子能损不明显地贡献于金属靶中原子位移的传统观念,并促使人们重新去审视已有的关于电子能损在固体材料中损伤形成的模型.

目前,通过多种技术,如一定剂量以上样品尺寸变化的光学显微镜测量^[2~4]、在线电阻测量^[5]、传统的化学蚀刻方法显示潜径迹形貌^[6]等,在多种非晶态固体中(包括非晶态合金、半导体和绝缘体等)观测到了快重离子在低剂量时引起的缺陷产生和高剂量时塑性形变.经过近十年的研究,虽然积累了很多的实验数据,对描述塑性形变的某些规律有了一定的认识,然而在微观机制的探讨和支配塑性形变主要参数的认识上仍很肤浅.因此,至

* 国家自然科学基金资助课题.
1996-11-08收稿,1997-03-13收到修改稿.

今人们对快重离子辐照引起的塑性形变仍十分关注, 并不断有新的实验和理论结果报道。

2 近期实验上取得的新结果

早期, 一般采用 Kr 和 Xe 离子(相应的电子能损处在 $1.5 \text{ keV}/\text{\AA} < S_e < 3.5 \text{ keV}/\text{\AA}$) 辐照非晶态合金研究电子能损引起的塑性形变, 而在其它电子能损区开展的工作较少, 因而大大地限制了对塑性形变规律的认识。针对这些局限性, 近期的实验使用了多种重离子辐照(拓宽了电子能损 S_e 取值范围), 对非晶态合金中缺陷的产生和各向异性的塑性形变进行了更为详细的研究, 其中有四类实验取得了较好的结果。

2.1 高电子能损下的塑性形变研究

Audouard A 等人^[7]利用在线电阻测量的方法详细地研究了在 80 K 的低温下 GeV Pb 离子 ($S_e = 4.5 \text{ keV}/\text{\AA}$) 辐照非晶态合金 $\text{Fe}_{85}\text{B}_{15}$ 时电子能损引起的损伤效应。从电阻随剂量变化数据, 得到了电阻率 ρ 和样品尺寸 L 随辐照剂量 ϕt 的变化。在同一实验中,

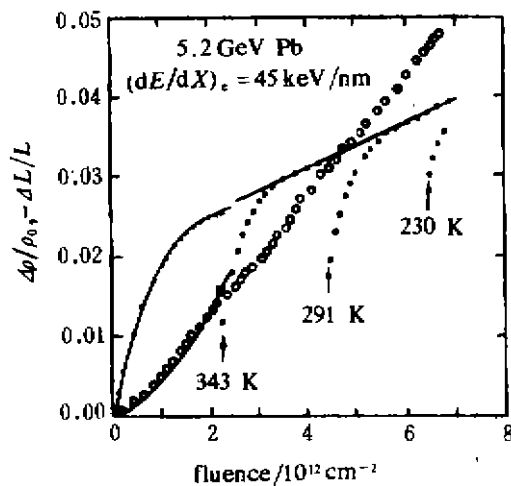


图 1 80 K 的低温下 GeV Pb 离子辐照非晶态合金 $\text{Fe}_{85}\text{B}_{15}$ 电阻率变化 $\Delta\rho/\rho_0$ (·) 和尺寸变化 $\Delta L/L_0$ (°) 随辐照剂量 ϕt 的关系, 图中的温度给出了在特定的剂量下进行退火的温度

通过对样品退火(退火温度在 176~343K), 研究了样品的生长率 A 随样品中缺陷浓度变化的信息。图 1 给出了实验得到的典型结果。

在这一实验研究中, 有几点结果是非常有意义的。第一, 样品的尺寸变化在辐照一开始就以一定的速率进行, 生长速率 A (生长曲线的斜率) 随剂量增大而增大, 当剂量到某一个值时, 达到了稳态生长, 即生长随辐照剂量 ϕt 线性地变化。第二, 样品的生长率 A 明显地依赖于样品每一个辐照区间的初始态缺陷浓度, 初始态缺陷浓度越高, 生长率 A 越大。通过退火, 样品中辐照引起的缺陷被部分地退火掉, 再次辐照时, 样品中所含有初始态缺陷的浓度大大地减小(几乎接近于未辐照样品的初始态缺陷浓度值), 结果生长以一个较小的速率开始(见图 1)。第三, 电阻率的相对变化随剂量增加不出现饱和, 这种不饱和性是否反映了样品体积的变化或电子能损增强了样品表面的溅射? 还有待于进一步的实验去证实。

这些研究结果, 在一定的程度上让人去重新考虑潜伏剂量, 体积的稳定性以及辐照引起的缺陷在生长中起怎样的作用等问题。

2.2 低电子能损引起塑性形变的研究

利用兰州重离子加速器(HIRFL)提供的 2.79 MeV/u Ar 离子 ($S_e \sim 1.0 \text{ keV}/\text{\AA}$) 在 50K 以下的低温辐照几种非晶态合金, 研究了较低电子能损引起的塑性形变, 并在 $1.6 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 的辐照剂量, 观测到了最大形变量达到 12%。图 2 给出了 2 种非晶态合金相对宽度增长 $\Delta b/b_0$ 随剂量的变化, 其中, 图中直线是由(1)式对实验点的线性拟合。目前国际上用 Ar 离子辐照非晶态合金研究塑性形变的工作非常少, 与报道的数据相比^[8], 本实验观测到了更为明显的形变结果。这可能与使用的实验条件有关系, 在该研究中, 非晶态合金样品的厚度与离子的射程较接近, 离子在样品中通过核能损的方式沉积了较多的能量, 产生了更多的缺陷, 大的形变可能就与这些缺陷产生有关。

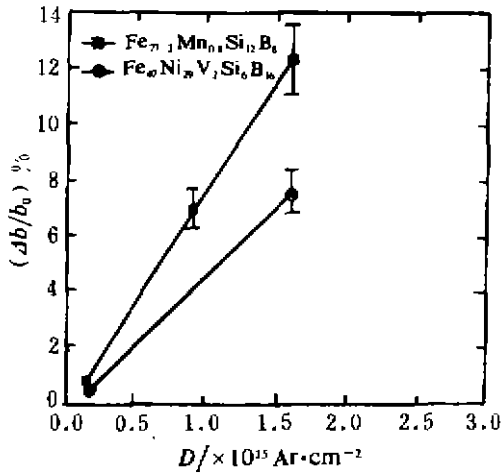


图 2 50 K 低温下 2.79 MeV/u Ar 离子辐照几种非晶态合金其宽度相对增长 $\Delta b/b_0$ 随辐照剂量 ϕ_t 的变化关系

2.3 非晶态合金中潜径迹的研究

Trautmann C^[9]等人用传统的化学蚀刻方法在非晶态合金中成功地蚀刻出了电子能损引起的潜径迹,扩展了对潜径迹的认识.利用 0.7N HCl 加 0.8 V 电压,对 Pb 和 U 离子辐照的非晶态合金 $\text{Fe}_{81}\text{Si}_{13.5}\text{B}_{13.5}\text{C}_2$ 进行了化学蚀刻.当电子能损 $S_e \geq 3.6 \text{ keV}/\text{\AA}$ (即潜径迹蚀刻的电子能损阈值),离子辐照的非晶态合金样品都蚀刻出了张角 60° 的锥状坑.通过蚀刻,不但可以得到蚀刻的潜径迹的电子能损的阈值以及沿离子路径电子能损引起的损伤密度的信息,而且给出了电子能损引起非晶态合金样品损伤产生的强有力证据.

2.4 非晶/晶体/非晶包裹辐照实验

Benyagoub A 等人^[10]利用 500 MeV 的 I 离子辐照三明治形式的样品结构(两层 1 μm 厚的 Ni_3B 非晶态合金包裹了不同厚度的(20 ~ 900 nm)的晶态 Au),采用卢瑟福背散射分析方法(RBS)在微观尺度上显示了塑性形变现象.结果发现:(1)在背散射谱中,来源于 Au 的散射峰明显地朝样品的表面移动,这说明了包裹在 Au 层上的非晶态合金样品的厚度发生了变化,即减薄.(2)非晶态合金 Ni_3B 的塑性形变与晶态 Au 层的厚度有关,当 Au

的厚度增加到一定量,塑性形变会大大地减小.图 3 给出了包裹 Au 层厚度为 500 nm 时测量到的 RBS 背散射谱.

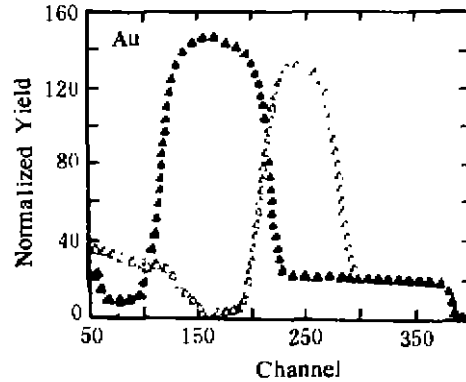


图 3 在液氮温度下,用 500 MeV I 离子辐照三明治结构(非晶态 Ni_3B -Au-非晶态 Ni_3B)到 3×10^{15} 离子/ cm^2 时记录到的 RBS 谱.实心三角代表辐照样品,空心三角代表未辐照样品

以上实验结果不但提供了高电子能损引起的非晶态固体低剂量下缺陷的形成和高剂量下塑性形变,而且对微观机制的探讨很有参考价值.

3 理论机制探讨的新进展

自从离子束引起的塑性形变发现以来,人们一直试图从微观上来解释此现象形成的原因,为此提出了许多尝试性的模型.如基于尺寸测量得到的结果,Klaumunzer S^[2]等人将塑性形变现象归因于表示材料机械极化的“剪切单位”的产生,从而触发了不可逆的“剪切转变”.可以认为这种类型的缺陷结构(“剪切单位”)来源于原子的电离和电子激发引起的“库仑爆炸”.Audouard A 等人^[5]基于他们测量到的电阻变化结果提出了一种“两次冲击”的唯象模型.认为来源于离子辐照的第一次冲击在原始的材料中产生了无序区,第二次冲击在无序区引起了生长.Szenes G^[11]基于缺陷反应运动学并结合热峰模型对塑性形变进行了尝试性的解释.虽然这些解释和模

型在一定的程度上给出了与实验数据比较一致的理论结果,但不能给出支配塑性形变现象的相关参数^[2,11],或不能从微观上解释沉积到靶电子中的能量如何转化为原子的位移这个基本过程^[6].

近年来,在塑性形变机制的探讨上,出现了前所未有的热潮,并取得了可喜的进展.在这方面,Trinka H^[12]等人提出的粘弹性模型(Visco-elastic Model)富有代表性.它在一定的程度上解释了高电子能损情形下的塑性形变的基本规律,并给出了与实验结果比较一致的渐近表达式.这个模型的基本点在于:当沉积到靶电子系统中的能量比较大时(即较高的电子能损),沿离子路径的一个较狭窄的柱状区域熔化,在这个区域中的物质变成了具有较小粘滞系数的流体,而在其周围的物质,由于温度较低,则表现为弹性,因此辐照的结果使得在非晶态固体中产生了弹性物质包裹了流动性物质的区域.在该区域受热而产生的热应力会发生弛豫,产生了一定的应力应变.由于热与周围冷的基体的交换,热的柱状区域会很快地冷却下来,在冷却过程中,应力弛豫产生的应变增量会被“冻结”,从而产生了一定的形变.经过一定的数学处理,对于高电子能损 δ_e 引起的显著热峰,可以得到以下的形变渐近表达式

$$\dot{\varepsilon} = \varepsilon^T \Phi (dE/dX) / e \rho C \Delta T^* \quad (3)$$

式中, $\dot{\varepsilon}$ 为剪切应变率, ε^T 为一个冻结的热峰径迹中平均无应力剪切应变, Φ 为离子的通量密度, (dE/dX) 为在原子的子系统中电子能损进入热峰的那部分, e 为常数,与热峰形变有关, ρ 为材料的密度, C 为材料的比热, ΔT^* 为材料的临界流动温度 T^* 与辐照温度 T_0 的差.

冻结在 $T < T^*$ 温度下的无应力剪切应变 ε^T 可以用弹性各向同性介质中的弹性不均匀性理论来处理,由此处理的结果为

$$\varepsilon^T = 3\varepsilon_{11,22}^T = -\frac{3}{2}\varepsilon_{33}^T = M\alpha(\Delta T) \quad (4)$$

式中, M 为相应应变间的耦合系数,它依赖于

泊松(Poisson)比率 ν , α 为系数.1、2坐标轴垂直于束流方向,3坐标轴平行于束流方向.对于柱状热扩散, $\langle \Delta T \rangle = 1.16\alpha(T^* - T_0)$,由此得到应变的表达式

$$\begin{aligned} \dot{\varepsilon}_{11} &= \dot{\varepsilon}_{22} = 1/2\dot{\varepsilon}_{33} \\ &= (1.16/3e)[(1+\nu)/(5-4\nu)] \\ &\quad \cdot (\alpha/\rho C)\Phi(dE/dX) \end{aligned} \quad (5)$$

此模型不但从微观上解释了塑性形变的形成原因,得到了支配此现象的主要参数,如材料的比热 C ,离子通量密度 Φ 和电子能损 (dE/dX) 等,而且强调了与晶态固体的区别,并可以解释塑性形变的以下特征:(1)塑性形变表现出各向异性,即在垂直于束流方向样品的尺寸生长,而在平行方向上尺寸收缩.(2)样品的形变与离子的通量密度 Φ 和电子能损 (dE/dX) 成正比.模型还预言,当电子能损高到一定值时,潜伏剂量会消失,Audouard A等人^[7]的结果证实了这一点.不过,此模型也明显地存在如下的不足,它只能对较高电子能损引起的塑性形变给予解释,即沉积在靶系统中的能量必须能导致沿离子路径一个较狭窄的区域熔化,而对于低电子能损引起的塑性形变则没有说明.

4 有待解决的问题

随着离子束引起的非晶态固体塑性形变研究的不断深入,下列问题的研究变的越来越迫切.

(1)低电子能损、低剂量下小形变的直接测量.由于光学显微镜的精度差、在线电阻测量只能间接地给出样品尺寸的变化限制,所以至今小形变的数据相当少.然而,小形变的数据积累对于完整地理解塑性形变规律是很重要的.

(2)塑性形变与材料状态的联系.离子束引起的塑性形变通常在非晶态固体中出现,而在晶态固体中是否会有同样的现象发生?通过对同一材料处在两个不同状态(晶态和非晶态)的对比辐照研究,将有助于得到更多

的信息.

(3) 电子能损引起非晶态固体中缺陷的产生, 缺陷的扩散和迁移等规律的研究. 已有实验证实, 塑性形变与样品中初始态的缺陷浓度有较大关系^[7], 因此系统地研究辐照引起的缺陷形成规律对理解缺陷在塑性形变中如何起作用及探讨形变机制都很有意义.

(4) 在快重离子辐照下, 缺陷的产生对非晶态材料的宏观物理性能和微观结构的影响. 至今, 对微观结构和宏观性能的研究的报导还很少, 电子能损在何种程度上影响样品的宏观物理性能和微观结构还是一个比较崭新的课题.

通过对以上问题的着重研究, 可以将微观缺陷的产生与宏观塑性形变以及宏观物理性能的变化有机地结合起来.

参 考 文 献

- 1 Dunlop A, Leseuer D. Irradiation of Metallic Targets with High-Energy Heavy Ions; High Electronic Excitation Induced effects. *Mater Sci Forum*, 1992, 97~99, 553~576
- 2 Klaumunzer S, Schumacher G. Dramatic Growth of Glassy Pd₈₀Si₂₀ during Heavy-ion Irradiation. *Phys Rev Lett*, 1983, 51(21), 1987~1990
- 3 Hou Mingdong, Klaumunzer S, Schumacher G. Dimensional Change of Metallic Glasses during Bombardment with Fast Heavy Ions. *Phys Rev*, 1990, B41, 1144~1157
- 4 Klaumunzer S, Li Changlin, Loffler S et al. Plastic Flow of Vitreous Silica and Pyrex during Bombardment with Heavy Ions. *N I M*, 1989, B39, 665~689
- 5 Audouard A, Dural J, Toulemonde M et al. Atomic Displacements and Motion Induced by Electronic Excitation in Heavy-ion-irradiated Amorphous Metallic Alloys. *J Phys Condens Matter*, 1993, 5, 995~1018
- 6 Trautmann C, Spohr R. Stopping Power Dependence of Ion Track Etching in Amorphous Metallic Fe₆₁B_{13.5}Si_{3.5}C₂. *N I M*, 1993, B73, 513~517
- 7 Audouard A, Dural J, Toulemonde M et al. Electronic Stopping down-induced Dimensional Changes in Amorphous Fe₆₅B₁₅. *N I M*, 1996, B107, 185~188
- 8 Schumacher G, Klaumunzer S, Rentzsch S et al. Radiation-Induced Growth in Amorphous Pd₈₀Si₂₀ and Cu₅₀Zr₅₀. *J Non-Cryst Solids*, 1984, 61~62, 565~570
- 9 Trautmann C, Dufour C, Paumier E et al. Track Etching in Amorphous Metallic Fe₆₁B_{13.5}Si_{3.5}C₂. *N I M*, 1996, B107, 397~402
- 10 Benyagoub A, Chamberod A, Dran J C et al. Creep of a Crystalline Metallic Materials Layer Induced by High Energy Heavy Ion Irradiation. *N I M*, 1996, B107, 189~193
- 11 Szenes G. A Possible Mechanism of Formation of Radiation Defects in Amorphous Metals Bombardment with High Energy Heavy Ions. *Mater Sci Forum*, 1992, 97~99, 647~652
- 12 Trinkaus H. Local Stress Relaxation in Thermal Spikes as a Possible Cause for Creep and Macroscopic Stress Relaxation of Amorphous Solids under Irradiation. *J Nucl Mater*, 1995, 223, 196~201

Progress in Study of Fast Heavy Ion-beam-induced Plastic Deformation in Amorphous Alloys

LIU Changlong HOU Mingdong WANG Zhiguang

(*Institute of Modern Physics, the Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000*)

Abstract Present status in study of fast heavy ion-beam-induced plastic deformation in amorphous alloys is briefly reviewed. Further research trend and relevant problems are also discussed.

Key Words heavy ion irradiation amorphous alloys plastic deformation