

质子辐照对纯铝薄膜微观结构的影响^{*}

范鲜红^{1,2)} 陈 波¹⁾ 关庆丰³⁾

(中国科学院长春光学精密机械与物理研究所应用光学国家重点实验室, 长春 130033)

‡ 中国科学院研究生院, 北京 100049)

‡ 江苏大学材料学院, 镇江 212013)

(2007 年 4 月 12 日收到, 2007 年 7 月 17 日收到修改稿)

利用透射电子显微镜 (TEM) 详细分析了不同剂量的质子辐照纯铝薄膜样品的微观结构, 质子的能量 $E = 160$ keV. 实验表明, 质子辐照能够在 Al 薄膜中诱发空位位错圈, 在实验范围内, 位错密度随辐照剂量的增加而增加, 质子辐照在 $1 \times 10^{11} - 4 \times 10^{11}/\text{mm}^2$ 范围内随辐照剂量的增加, 位错圈数量密度以及位错圈尺寸都随之增加. 在较高剂量 $6 \times 10^{11}/\text{mm}^2$ 辐照下, 位错圈数量密度减小, 但其尺寸显著增加, 空位倾向于形成较大的空位簇缺陷, 且样品中出现胞状结构, 胞壁之间有角度很小的取向差, 这种胞状结构与材料力学性能的退化关系密切.

关键词: 质子辐照, 空位簇缺陷, 位错圈, 微观结构

PACC: 6180, 6170E

1. 引 言

载能束辐照导致材料性能的显著变化受到空间技术以及核技术等领域的普遍关注. 辐照条件下形成的空位簇缺陷是金属中最为常见的结构缺陷. 通常情况下空位簇缺陷的形成导致材料的宏观膨胀, 严重地降低材料的机械性能和物理性能^[1], 因此空位簇缺陷的形成与演化行为及其与其他缺陷之间的关系是研究材料性能和使役寿命的关键因素, 已经成为载能束辐照研究中一项重要的研究内容^[1, 2].

本文针对极紫外 (EUV) 太阳望远镜中所用的极紫外波段薄膜滤光片经辐照后的微观结构进行了研究. 滤光片是空间太阳望远镜的关键元件之一, 其性能好坏影响空间太阳望远镜的成像质量^[3-6]. 空间 EUV 太阳望远镜工作时滤光片几乎是完全暴露在外层空间自然环境下, 在低地球轨道条件下主要是遭受质子束的直接辐照. 很多光学系统在空间飞行一段时间后, 成像质量会有所降低, 其中最为重要的原因之一就是载能束流辐照使滤光片性能退化. 由于正在研制的空间太阳望远镜中的铝薄膜滤光片是比较昂贵和易损坏的光学材料, 因此本文采

用高纯铝薄膜作为实验样品, 通过空间环境模拟装置产生的质子束流对其进行辐照, 对质子束模拟辐照后材料内部形成的空位簇缺陷进行观察和分析, 探讨这些结构缺陷的形成与演化规律及其与材料变形行为之间的关系, 为揭示辐照条件下材料的变形机理以及预测材料的使役寿命提供必要的理论储备.

2. 试验材料及试验方法

采用纯度为 99.99% 的多晶纯铝作为实验样品材料, 样品辐照前经 200℃ 真空退火处理, 平均晶粒尺寸大约为 0.3 μm. 利用线切割技术从大块样品上切割厚度约为 1 mm 的薄片, 机械研磨至 100 μm 左右的厚度, 在 980 型半自动精密凹坑研磨仪上继续研磨至可进行电解双喷的程度, 再用电解双喷减薄仪 (电解液为 5% 的 HClO₄ 酒精溶液) 进行最终减薄, 制备成可用于电镜观察的透射薄膜样品, 最后用 “KIFK” 空间辐照环境模拟器对上述电镜薄膜样品进行质子辐照, 辐照条件为: 能量 160 keV 的质子束, 束流密度 $0.1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$, 辐照剂量分别为 1×10^{11} , 2×10^{11} , 4×10^{11} , $6 \times 10^{11}/\text{mm}^2$. 辐照后的薄膜样品的

* 国家自然科学基金 (批准号 50671042) 和中国科学院创新基金资助的课题.

† E-mail: bochen2000@yahoo.com.cn

‡ E-mail: guanqf@ujs.edu.cn

微观结构观察在 H-800 型 TEM 上进行,加速电压为 175 kV.

3. 实验结果及分析

图 1 为辐照剂量分别是 1×10^{11} , 2×10^{11} , 4×10^{11} , $6 \times 10^{11}/\text{mm}^2$ 的质子辐照后观察到的 Al 薄膜暗场 TEM 像.从图 1 中可以看出,在各种辐照剂量下样品内部都出现了大量的点状缺陷,这些点状缺陷即为载能束辐照后金属材料中经常出现的所谓黑点

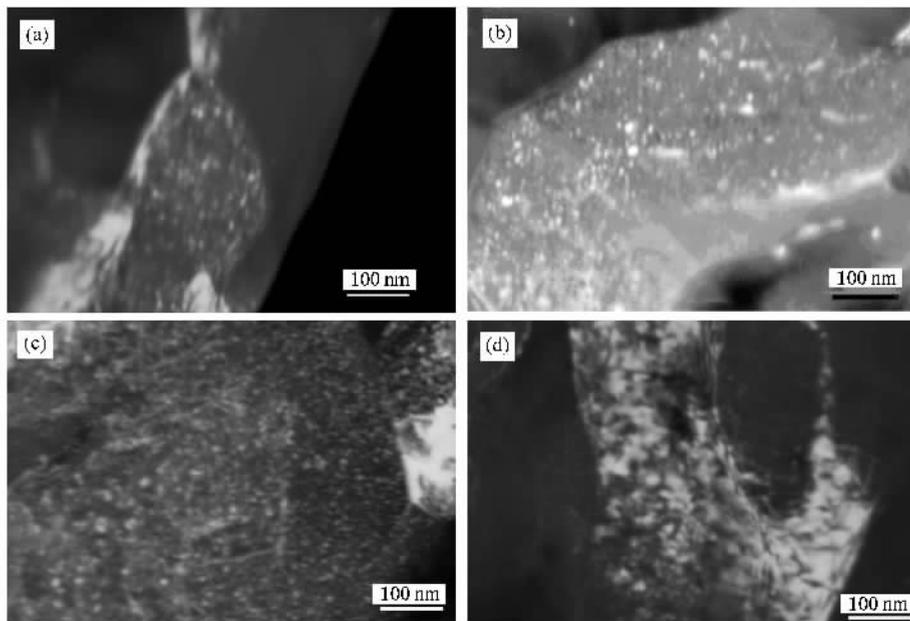


图 1 不同剂量质子辐照下 Al 薄膜中位错圈结构的 TEM 暗场像 (a) $1 \times 10^{11}/\text{mm}^2$; (b) $2 \times 10^{11}/\text{mm}^2$; (c) $4 \times 10^{11}/\text{mm}^2$; (d) $6 \times 10^{11}/\text{mm}^2$

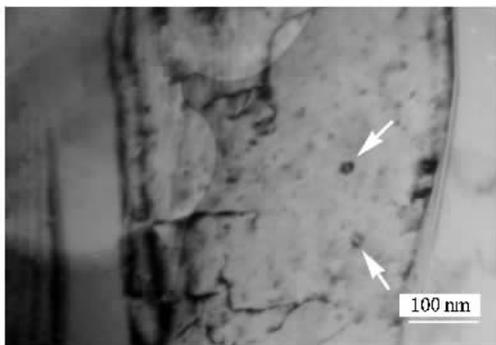


图 2 位错圈的 TEM 明场像(辐照剂量为 $2 \times 10^{11}/\text{mm}^2$)

实验显示所有观察到的 Frenkel 位错圈在 TEM 观察的过程中能够保持稳定,并无尺寸上的变化. Kiritani 等人的研究显示,在 TEM 观察过程中电子束照射的情况下,空位型位错圈的尺寸能够保持稳定,而间隙型位错圈却无法保持其尺寸稳定性^[9-11],据

缺陷(明场像中为黑点)^[7].图 2 为几个较大的点状缺陷的明场像,清楚地显示这些黑点缺陷为位错圈结构,即所谓的 Frenkel 位错圈^[8],其尺寸大约在 1—10 nm 范围内.这表明金属铝原子在质子束辐照下离开了正常的位置,随后产生了空位(vacancy)和填隙原子(interstitial atom),即所谓的 Frenkel 缺陷.由于铝为面心立方金属,{111}密排面具有最低的表面能,因此过饱和空位的凝聚应该优先地沿着{111}面结成空位盘.当空位盘足够大时,造成崩塌而形成 Frenkel 位错圈.

此可以判定我们在实验中观察到的 Frenkel 位错圈均为空位型位错圈.之所以没能观察到填隙型位错圈,其原因可能在于辐照样品太薄,致使辐照产生的所有填隙原子均从表面逃逸,从而无法形成间隙型位错圈.

图 3 为根据图 1 测量到的各辐照条件下空位簇缺陷的数量密度分布图,可以看出辐照剂量在 1×10^{11} — $4 \times 10^{11}/\text{mm}^2$ 范围内空位簇缺陷的数量密度随辐照剂量的增加而增加,而辐照剂量为 $6 \times 10^{11}/\text{mm}^2$ 时空位簇的数量密度却明显降低.图 4 为各辐照条件下空位簇缺陷的平均尺寸分布,可以看出随辐照剂量的增加,空位簇缺陷的平均尺寸也在增加.当辐照剂量为 $1 \times 10^{11}/\text{mm}^2$ 时,空位簇缺陷的平均尺寸较小,仅为 7.5 nm 左右,而当辐照剂量超过 $2 \times 10^{11}/\text{mm}^2$ 之后,空位簇缺陷的平均尺寸迅速增加,达到甚至超过 20 nm;而在辐照剂量为 $6 \times 10^{11}/\text{mm}^2$ 时,很

少能观察到尺寸小于 20 nm 的空位簇缺陷,可观察到的空位簇缺陷尺寸几乎都超过 20 nm. 这表明随辐照剂量的增加,空位簇缺陷有逐渐长大的趋向,高辐照剂量的情况下空位倾向于形成较大的空位簇缺陷.

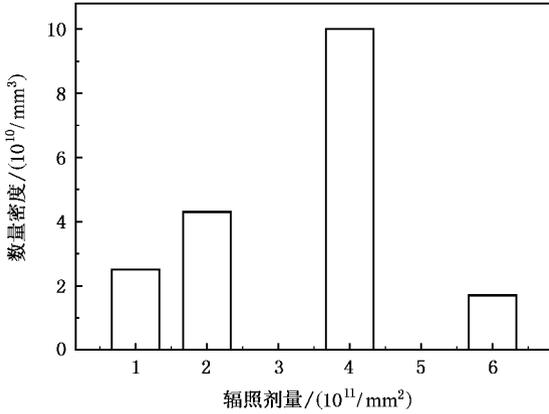


图 3 各辐照剂量下空位位错圈的数量密度

图 5 为不同辐照剂量下样品位错组态的 TEM 照片,当辐照剂量为 $1 \times 10^{11} / \text{mm}^2$ 时,样品中的位错密度较低,如图 5(a)所示,与未经辐照的 Al 样品相比差别不大;当辐照剂量超过 $2 \times 10^{11} / \text{mm}^2$ 之后,位错密度迅速增加,如图 5(b)~(d)所示. 在实验范围内,辐照剂量越大,位错密度也越高,位错之间纠结也越来越严重. 通常这种位错缠结结构是由于外加

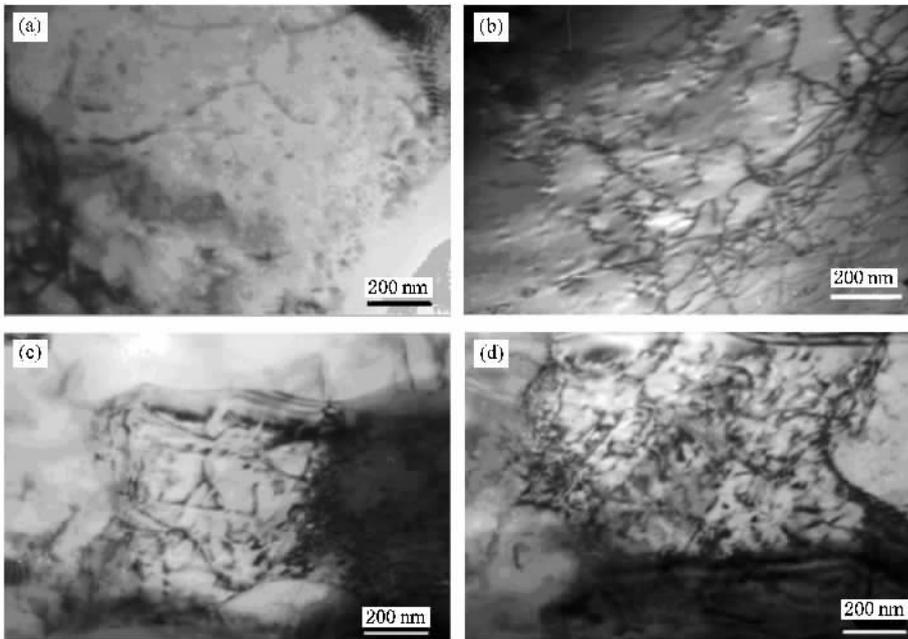


图 5 不同辐照剂量下样品的位错组态 (a) $1 \times 10^{11} / \text{mm}^2$; (b) $2 \times 10^{11} / \text{mm}^2$; (c) $4 \times 10^{11} / \text{mm}^2$; (d) $6 \times 10^{11} / \text{mm}^2$

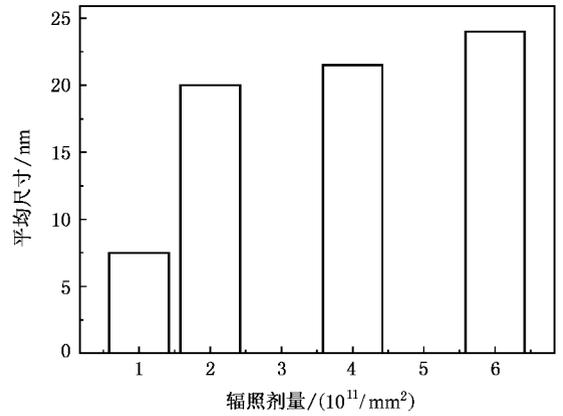


图 4 各辐照剂量下空位位错圈的平均尺寸

应力的作用使材料发生塑性变形而导致位错的运动引起的^[12],因此位错密度的增加意味着变形程度的增加,表明辐照诱发的位错滑移程度随辐照剂量的增加而增加.之所以出现这样的结果,是由于空位簇缺陷的形成导致了样品的宏观膨胀,使样品发生塑性变形,诱发样品中位错产生滑移并互相缠结.样品的膨胀程度与辐照剂量和空位簇尺寸关系密切,空位簇尺寸越大,样品的宏观膨胀程度也越严重.对于光学滤光片来讲,由于采用极薄的金属铝薄膜制备而成,因此其强度很低,在持续的质子辐照情况下,当材料中形成的空位簇尺寸超过一定值后,由于膨

胀效应,材料将可能承受不住这种变形,从而发生性能失效甚至断裂.

在高辐照剂量($6 \times 10^{11}/\text{mm}^2$)情况下,样品中还出现了大量的胞状结构,如图6所示.有些胞壁之间较为粗糙,并时有分岔现象出现,如图6(a)所示;而有些胞壁之间则非常平直,如图6(b)所示.图6(b)右上角的选区电子衍射图显示,胞壁之间存在较小的取向差,取向差最多不超过几度.曾经在低层错能

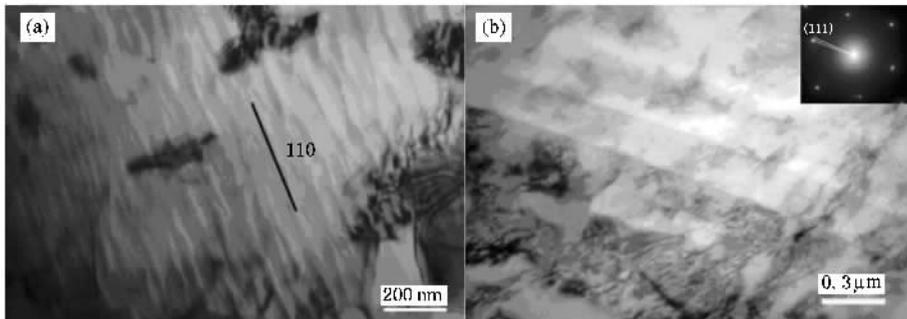


图6 高辐照剂量下形成的胞状结构(辐照剂量为 $6 \times 10^{11}/\text{mm}^2$)

我们注意到,在具有胞状结构的样品区域观察不到空位簇位错圈,从这一点来讲可以称胞状结构为无缺陷管道,这种所谓的无缺陷主要是指该区域没有点缺陷簇,而不包括位错缺陷,Bapna^[13]等曾经在中子辐照和低温变形的Al,Cu,Au等金属中观察到过这种无缺陷管道,并认为这种结构是由于局部区域有较大的应力集中而形成的,该区域容易萌生微裂纹并有可能使材料发生脆性断裂而造成机械性能的退化.总之,关于这种胞状结构的形成以及对材料性能的影响,目前我们还无法给出明确的结论,尚需进一步细致的实验观察和深入的理论分析.

需要指出的是,质子辐照诱发大量的空位簇缺陷的尺寸与空间望远镜使用的光源波长大体相当,做为薄膜滤光片,其间的空位簇缺陷可能会影响光传播的物理特性,反过来,我们也可以利用光源透过滤光片后传播特性的改变来研究空位簇缺陷的几何

金属Cu的加工硬化第Ⅲ阶段(动态回复阶段)中观察到过类似的结构^[11],在此阶段材料的硬化系数随应变的增加而减小,故而产生所谓的加工软化现象,但还未见过有关在Al这种高层错能金属中发现这种现象的报道.如果这些胞状结构产生的机理与Cu的加工硬化第Ⅲ阶段形成的机理相同,则说明一定剂量质子辐照能够使Al产生软化,从而降低了材料的强度.

分布特征,这对空位簇缺陷的研究无疑是一种崭新的尝试,我们将在今后的工作中尝试这方面的研究.

4. 结 论

1. 能量 $E = 160 \text{ keV}$ 的质子辐照能够在Al薄膜中诱发空位位错圈,在实验范围内,随辐照剂量增加,位错组态和尺寸都随之增加.

2. 当质子辐照剂量在 $1 \times 10^{11} - 4 \times 10^{11}/\text{mm}^2$ 范围内时,随辐照剂量的增加,位错圈数量密度以及位错圈尺寸都随之增加;当辐照剂量为 $6 \times 10^{11}/\text{mm}^2$ 时,位错圈数量密度减小,但其尺寸显著增加.

3. 在较高辐照剂量情况下,空位倾向于形成较大的空位簇缺陷,且样品中出现胞状结构,胞壁之间有角度很小的取向差,这种胞状结构与材料力学性能的退化关系密切.

[1] Hirth J P, Lothe J 1982 *Theory of Dislocations* (New York: John Wiley) p492

[2] Feng D 2000 *Metal Physics* Vol.1 (Beijing Science Press) p226 (in Chinese) 冯端 2000 金属物理学,第一卷(北京:科学出版社)第226页

[3] Gussenhoven M S, Mullon E G 1993 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **40** 221

[4] Pippin G 2003 *Progress in Organic Coatings* **47** 424

[5] Lauriente M, Vampola A L, Koga R, Hosken R 1999 *J. Spacecraft Rockets* **36** 902

[6] Kan H K A 1985 *SPIE* **541** 164

[7] Guan Q F, Pan L, Zou H, Wu A M, Hao Z S 2004 *J. Mater. Sci.* **39** 6349

[8] Hirsch P B, Home R W, Whelan M J 1956 *Philos. Ma.* **1** 677

- [9] Kiritani M , Yoshiie T , Kojima S , Tyoshi E , Kizuka Y , Matsunami N 1994 *J. Nucl. Mater.* **192** 212
- [10] Kiritani M , Takata H 1978 *J. Nucl. Mater.* **67** 277
- [11] Guan Q F , An C X , Qin Y , Zou J X , Hao S Z , Zhang Q Y , Dong C , Zou G T 2005 *Acta Physics Sinica* **8** 3927 (in Chinese) [关庆丰、安春香、秦颖、邹建新、郝胜志、张庆瑜、董闯、邹广田 2005 物理学报 **8** 3927]
- [12] Feng D 2000 *Metal Physics* Vol. 3 (Beijing : Science Press) p153 (in Chinese) [冯端 2000 金属物理学, 第三卷(北京:科学出版社)第 153 页]
- [13] Bapna M S , Mori T , Meshii M 1968 *Philos. Mag.* **17** 177

The influence of proton irradiation on the microstructure of pure Al films *

Fan Xian-Hong¹⁾²⁾ Chen Bo^{1)†} Guan Qing-Feng^{3)‡}

1) *State Key Laboratory of Applied Optics , Changchun Institute of Optics , Fine Mechanics and Physics , The Chinese Academy of Sciences , Changchun 130033 , China)*

2) *Graduate School of Chinese Academy of Sciences , Beijing 100049 , China)*

3) *College of Material Science and Engineering , Jiangsu University , Zhenjiang 212013 , China)*

(Received 12 April 2007 ; revised manuscript received 17 July 2007)

Abstract

In this work , we investigated the microstructures of pure aluminum films irradiated with 160 keV proton by varying the irradiation dose. The vacancy clusters induced by proton irradiation in Al films are characterized by TEM , and the density and size distribution are determined. In the irradiation dose range of our studies , the density and size of vacancy clusters and the dislocation density increase with increasing irradiation dose. Our experimental results show that the dislocation density and size of vacancy clusters increase as the irradiation dose increases from 1×10^{11} to $4 \times 10^{11} / \text{mm}^2$. When the irradiation dose is as high as $6 \times 10^{11} / \text{mm}^2$, the number density of dislocation loops decreases , while the size of dislocation loop increases obviously. The vacancies tend to form larger clusters , accompanied by the formation of banded structures in the irradiated sample at higher irradiation doses. We found that there were small crystal orientation differences among the boundaries of banded structure. This banded structure is closely related to the degradation of mechanical and physical performance of irradiated material.

Keywords : proton irradiation , vacancy defect , dislocation structure , microstructure

PACC : 6180 , 6170E

* Project supported by National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50671042) and Innovation Foundation of Chinese Academy Sciences.

† E-mail : bochen2000@yahoo.com.cn

‡ E-mail : guanqf@ujs.edu.cn