

表面氧化层对共振反应寿命测量影响的 Monte-Carlo 模拟

潘正瑛 周 鹏

(复旦大学原子核科学系)

1987 年 5 月 5 日收到

提 要

本文用两次碰撞近似的 Monte-Carlo 模拟计算了 Al 单晶中在 2000 Å 深度发射的、能量为 2.12 MeV 的 α 粒子沿 $\langle 110 \rangle$ 轴的阻塞角分布。计算中除了考虑晶格原子热振动、电子多次散射等因素,在 Al 单晶表面引入了 Al_2O_3 有效氧化层。计算结果表明:考虑了无定形表面氧化铝层以后,模拟的阻塞角分布比未考虑氧化层时更接近于实验曲线。

一、引 言

晶体的阻塞技术已被用于测量复合核的寿命^[1,2]。理论上用“分析”法或 Monte-Carlo 模拟法计算得到的阻塞分布与实验测量的角分布进行比较,可以定出复合核的寿命^[6]。由于各种原因,实验用的 Al 单晶靶表面总有一层或薄或厚的氧化层^[8]。此外,由于晶体内部存在的缺陷、损伤,也会使阻塞角分布偏离理想情况。以往的模拟计算都是假设靶晶体为理想单晶,偏离了实验条件,结果较粗糙。从文献 [1][2] 和 [6] 中看出,模拟的阻塞角分布与实验测量值有明显的不符之处(图 4),最小产额 χ_{\min} 偏小,阻塞坑体积 Q 偏大(χ_{\min} 及 Q 的定义见文献 [3])。为了使模拟计算更接近实验条件,同时又尽量简化计算模型,本文引入了表面“有效氧化层”的概念,它主要是晶体表面实际存在的氧化层厚度,还包括前面提到的内部缺陷等其它因素的总和。通过模拟表面具有一定厚度的有效氧化层的 Al 单晶中 α 粒子的阻塞分布与实验角分布的比较,分析表面氧化层对阻塞效应的影响,同时将完整晶体、有表面氧化层晶体中的阻塞分布与实验曲线进行比较,可以定性地判断样品表面处理的质量。

本文的计算通过两个较成熟的 Monte-Carlo 模拟程序实现。其中 MARLOWE 程序是研究离子在晶体中运输的大型通用程序之一^[4],可以模拟多种晶体结构,并由沿轴向上的任意旋转实现多晶与非晶固体的模拟。它对每次碰撞过程要考虑很多原子的同时碰撞,较费时。本文主要模拟瞬发阻塞角分布($v_{\perp} \tau = 0$),多次散射的影响可以忽略,只需考虑单弦模拟^[3]。因此,我们用文献 [1] 中使用的、专门用来模拟阻塞效应的单弦模拟程序 (MCDIP) 模拟 α 粒子在 Al 单晶中的运输过程。进入氧化层后,由于 Al_2O_3 结构复杂,上述程序不再适用,用 MARLOWE 程序实现。这样,我们实现了两个较成熟程序

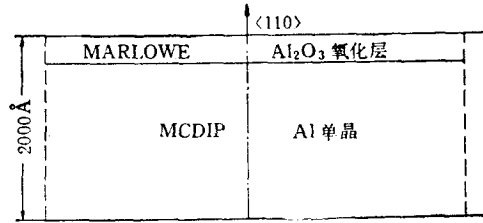


图1 两个模拟程序 MARLOWE 与 MCDIP 连接示意图

的连接(图1)。

二、模拟条件的选择

1. 模拟条件

与 $E_p=1183\text{keV}$ 的 $\text{Al}(p, \alpha)\text{Mg}$ 共振反应相应, α 粒子的初始能量为 $E_0=2.12\text{MeV}$, 沿 $\langle 110 \rangle$ 轴方向穿过的 Al 晶体厚度为 2000 \AA (包括单晶与表面氧化层厚度之和)。

对于真实的物理情形, 晶体中发射的 α 粒子是全空间各向同性分布的, 由于大角度发射的粒子对阻塞分布几乎没有贡献, 一般的模拟计算把发射极角(θ 角)限制在 $\theta \leq 0.03\text{rad}$ 范围内各向同性余弦分布(图2)

$$f(\cos\theta) = \begin{cases} 1/(1 - \cos\theta_0) & 0 \leq \theta \leq \theta_0 = 0.03\text{rad}, \\ 0 & \theta_0 < \theta \leq \pi. \end{cases} \quad (1)$$

但是, 计算结果表明^[3], $\theta \geq 0.03\text{rad}$ 处发射的粒子对阻塞曲线还是有一定贡献的, 而增加 θ_0 必然会大大降低计算的统计精度。为了得到合理的阻塞分布曲线, 我们将 $\theta \leq 0.03\text{rad}$ 的各向同性余弦分布扩大为 $\theta \leq 0.05\text{rad}$ 的各向同性余弦分布, 并引进了重要抽样, 对阻塞分布曲线贡献大的(小角度)多抽样, 贡献小的少抽样。由计算机拟合了一个三次多项式选为重要抽样函数(图2)^[7],

$$f_1(\cos\theta) = \begin{cases} A_0 + A_1(1 - \cos\theta) + A_2(1 - \cos\theta)^2 + A_3(1 - \cos\theta)^3 & 0 \leq \theta \leq \theta'_0, \\ 0 & \theta'_0 \leq \theta \leq \pi, \end{cases} \quad (2)$$

其中 $\theta'_0 = 0.05\text{rad}$ 。这样, 每个试验粒子带的权重因子为

$$W(P) = \frac{f(\cos\theta)}{f_1(\cos\theta)} = \frac{1}{(1 - \cos\theta'_0)f_1(\cos\theta)} \quad 0 \leq \theta \leq \theta'_0, \quad (3)$$

式中 $f(\cos\theta)$ 是在 $\theta \leq 0.05\text{rad}$ 范围内的各向同性余弦分布。

计算中考虑了 Al 单晶的晶格原子在其平衡位置附近按高斯分布作热振动, 德拜温度为 390K , 室温取 $T = 393\text{K}$, 假定 z 轴为 $\langle 110 \rangle$ 晶轴方向, 对于瞬发的阻塞曲线, $v_{\perp}\tau = 0$, 发射 α 粒子的坐标抽样只考虑热振动即可。 $v_{\perp}\tau \neq 0$ 的情形, 需加上指数衰减抽样定粒子的坐标。粒子和晶格原子的相互作用势取 Thomas-Fermi 势的 Moliere 展开, 每次碰撞的偏转角由冲量近似计算。两次碰撞间考虑了电子多次散射引起的非弹性能量损失及平均偏转修正^[4]。 α 粒子离开 Al 单晶后进入表面氧化层, Al 单晶的最后一层即 Al_2O_3 的第一层。在无定形氧化层中忽略了热振动。

2. 表面 Al_2O_3 无定形层

α 粒子在 Al_2O_3 氧化层中的散射用 MARLOWE 程序模拟, $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 的结构如图 3(a) (平面)及图 3(b) (立体)所示. 其晶体属空间群 $R\bar{3}c$, 是六面体晶胞, $a = 4.759 \text{ \AA}$, $c = 12.99 \text{ \AA}$; O 离子位于 $\pm[x 0 1/4; 0 x 1/4; \bar{x}\bar{x}1/4]$; Al 离子位于 $\pm[0 0 z; 0 0 1/2+z]$, $x = 0.306$, $z = 0.352^{[5]}$.

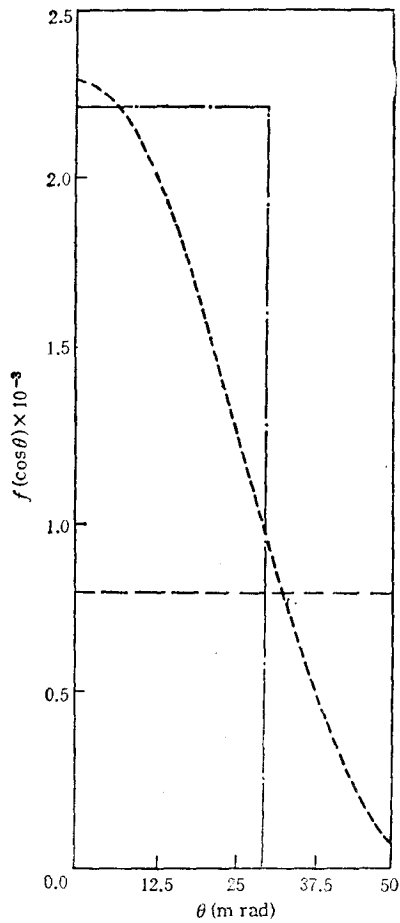
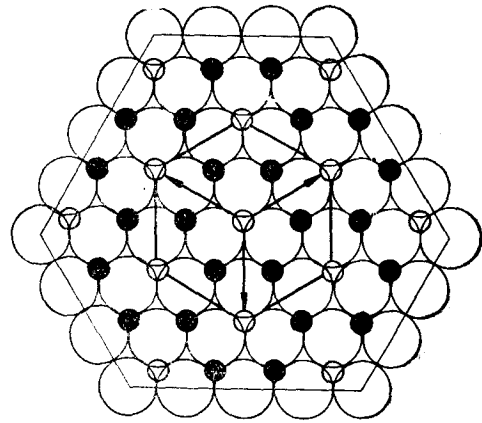
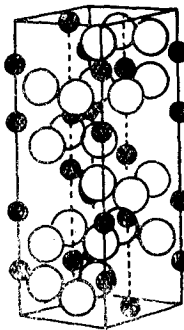


图 2 α 粒子初始发射方向抽样函数
 - - - 为 $\theta \leq 0.03 \text{ rad}$ 各向同性余弦分布抽样;
 - - - 为 $\theta \leq 0.05 \text{ rad}$ 重要抽样函数;
 - · - 为 $\theta \leq 0.05 \text{ rad}$ 各向同性余弦分布



(a) $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 结构平面图



(b) $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 结构立体图

图 3

大空心圆为 O 离子; 小实心圆为 Al 离子;
 小空心圆为八面体间隙

计算中考虑到其原胞是菱面体, $a = 5.12 \text{ \AA}$, $\alpha = 55^\circ 17'$, 由变换矩阵, 得到 Al 及 O 离子在原胞内的坐标, 输入 MARLOWE 程序. 在 MARLOWE 程序中, 按晶体结构找到将与 α 粒子碰撞的晶格原子后, 在每次碰撞前, 将原子沿轴向任意转一角度, 以实现无定形材料的模拟.

三、结果与讨论

1. 结果

α 粒子从表面氧化层中出射时, 将其出射方向按极角归类, 步长 1mrad 得到阻塞角

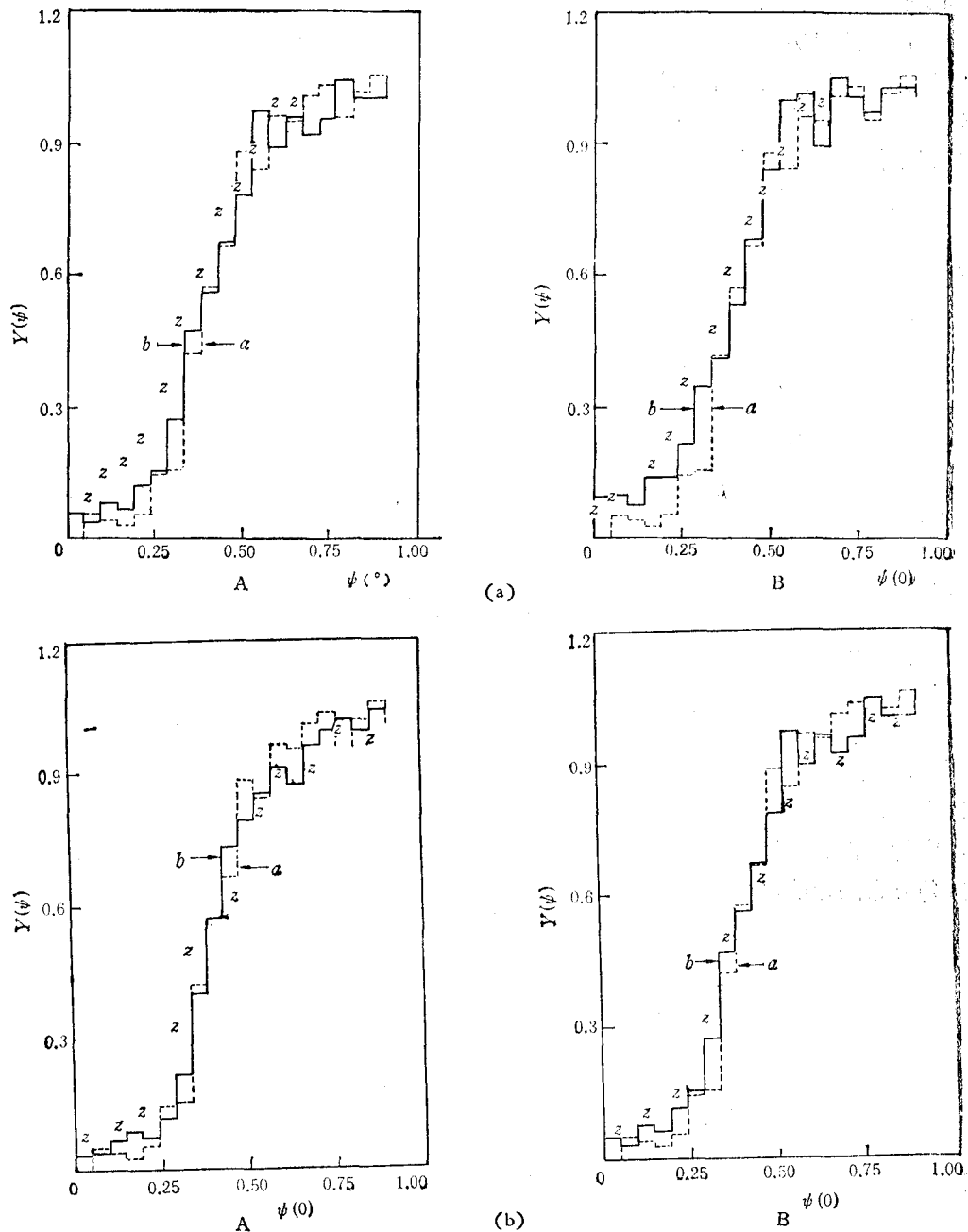


图4 α 粒子阻塞角分布曲线 z 为实验测量值, 分别取自文献 [1] (图 4(a)) 及文献 [21] (图 4(b)); ---- 为无表面氧化层的模拟结果; - 为有表面氧化层的模拟结果; 图中曲线相应的表面氧化层厚度分别为 200 \AA (图 4(a)A), 300 \AA (图 4(a)B), 100 \AA (图 4(b)A) 及 200 \AA (图 4(b)B)

分布. 每次模拟跟踪的粒子数为 2×10^4 个.

开始, 我们对 $v_{\perp}\tau = 0.1 \text{ \AA}$ 的情形引进 100 \AA 的有效氧化层, 阻塞曲线中小角度的产额明显升高. 为集中研究表面氧化层的影响, 我们主要模拟几条 $v_{\perp}\tau = 0$ 的瞬发曲线, 分别计算了氧化层厚度为 0 \AA , 100 \AA , 200 \AA 及 300 \AA 的阻塞角分布, 并与文献 [1] 和 [2] 的实验结果进行比较.

图 4 给出实验和理论计算的 α 粒子阻塞角分布, 其纵坐标为归一化产额. 图 4(a) 中的实验值取自文献 [1], 曲线 *a* 为未引入氧化层的模拟结果, 曲线 *b* 分别为引入 200 \AA (图 A) 及 300 \AA (图 B) 氧化层的模拟结果. 比较看出, B 图的曲线 *b* 更接近实验曲线. 我们粗略估计实验用的 Al 单晶的有效氧化层 $\lesssim 300 \text{ \AA}$.

图 4(b) 中的实验曲线引自文献 [2], 曲线 *a* 为完整晶体中的模拟结果, 而曲线 *b* 分别为引入 100 \AA (图 A) 及 200 \AA (图 B) 氧化层的模拟结果. 从阻塞角分布的比较可粗略估计该实验用的 Al 单晶的有效氧化层 $\lesssim 200 \text{ \AA}$.

阻塞曲线的一个重要参量是最小产额 χ_{\min} . 由于小角度 ($\theta \approx 0$ 附近) 统计涨落很大, 要精确给出 χ_{\min} 较为困难. 考虑到阻塞坑底部较平坦, 为了粗略估算氧化层厚度与 χ_{\min} 的关系, 我们取阻塞坑底部三点产额的平均值作为 χ_{\min} 的近似值, 不同模拟条件的 χ_{\min} 值列于表 1.

表 1 不同氧化层厚度阻塞曲线的 χ_{\min} 近似值

| 氧化层厚度(\AA) | 0 | 100 | 200 | 300 |
|----------------------------|-----|-----|-----|-----|
| $\chi_{\min}(\times 0.01)$ | 3.0 | 3.5 | 5.5 | 9.1 |

图 5 给出 χ_{\min} 随氧化层厚度变化的大致趋势. 这样, 由实验阻塞曲线的 χ_{\min} 值, 可近似估算表面氧化层的厚度. 例如文献 [1] 的 $\chi_{\min} \approx 6\%$, 相应的有效氧化层厚度约为 220 \AA . 文献 [2] 的 $\chi_{\min} \approx 4\%$, 相应的有效氧化层厚度约为 150 \AA .

由 $v_{\perp}\tau = 0$ 瞬发模拟曲线与瞬发实验阻塞曲线的比较, 可以定出有效氧化层的大概厚度. 这样, 在有限寿命的阻塞分布 Monte-Carlo 模拟中, 代入同样的模拟条件, 即同样厚度的表面有效氧化层与实验曲线比较, 可以消除由于表面氧化层、晶格损伤等因素对阻塞角分布的影响, 提高寿命测量的精度.

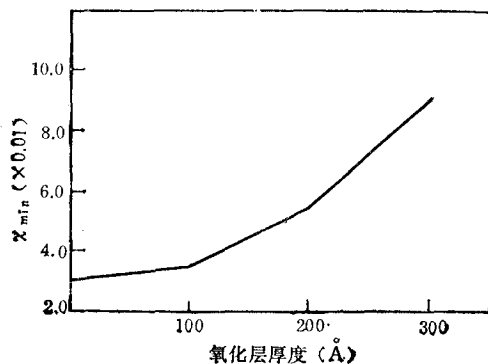


图 5

2. 讨论

由于晶体中的沟道效应, 沿晶轴方向的阻塞角分布很陡, χ_{\min} 很小, 表面无定型层及内部缺陷等因素都是破坏晶格原子的规则排列, 因此阻塞效应减弱, 最小产额 χ_{\min} 增大, 阻塞坑变浅, 坑体积 Q 减小. 文献 [8] 中分析的完整晶体 Monte-Carlo 模拟结果与实验曲线的偏差, 作者认为这种偏差主要是由于表面氧化层及晶格损伤所引起, 并引进一个折迭函数, 其参数定性反映这种偏离.

本文的模拟计算证实了造成理论计算与实验偏差的主要原因确是表面无定型氧化层.

从理论计算与实验曲线的比较看出, 文献 [2] 的实验中, 对该样品进行了高质量的表面处理, 因此表面有效氧化层要薄一些. 从表面有效氧化层的厚度可以大致判断晶体表面处理的质量.

本文仅考虑了包括单晶表面有效氧化层的一个简化模型. 在实验中样品表面还发现有 C 沾污, 此外, α 粒子的发射深度是有一定分布的; 这些因素在我们的简化模型中尚未考虑. 但是氧化层的引进显然可以改进 $v_{\perp}\tau \approx 0$ 的模拟计算的条件, 提高寿命测量的精度.

参 考 文 献

- [1] 金卫国等, *Nucl. Instr. & Meth.*, (1987), 待发表.
- [2] F. Malaguti *et al.*, *Phys. Rev.*, **C19**(1979), 1606.
- [3] E. Fusichini *et al.*, *Rad. Eff.*, **81**(1984), 37.
- [4] M. T. Robinson, *Phys. Rev.*, **B9**(1974), 5008.
- [5] R. E. Newnham *et al.*, *Z. Krist.*, **117**(1962), 235.
- [6] E. Fuschini *et al.*, *Rad. Eff.*, **53**(1980), 87.
- [7] 潘正瑛等, 计算物理, 待发表.
- [8] E. Fuschini *et al.*, *Rad. Eff.*, **32**(1977), 109.

THE MONTE-CARLO SIMULATION OF THE EFFECT OF THE SURFACE OXIDE LAYER ON THE LIFETIME MEASUREMENTS IN RESONANCE REACTIONS

PAN ZHENG-YING ZHOU PENG

(Department of Nuclear Science, Fudan University, Shanghai)

ABSTRACT

The binary collision Monte-Carlo method is used to calculate the blocking angular distribution of α -particles of about 2 MeV around $\langle 110 \rangle$ axis in Al single crystal, in which a surface Al_2O_3 amorphous layer of different thickness is considered. The thermal vibrations of lattice atoms and electronic multiple scattering are taken into account. The resulting angular distribution is closer to the experimental measurements than that with perfect crystal.