

聚变 α 粒子对第一壁辐照损伤的 蒙特-卡罗研究(II)*

溅 射

邵其鋆 陈建新 吴士明 潘正瑛 霍裕昆

复旦大学物理二系, 上海, 200433

高 兴 华

中国科学院等离子体物理研究所, 合肥, 230031

1990年6月1日收到

本文应用蒙特-卡罗方法研究聚变 α 粒子对不锈钢第一壁的溅射损伤。首先, 计算单种元素 Fe, Cr, Ni 的溅射产额随入射能量的变化, 并与实验结果比较, 以确定计算中所用到的一些重要参数, 如原子位移能等。在此基础上计算聚变 α 粒子对不锈钢 ($\text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.18}\text{Ni}_{0.09}$) 的部分(和总)溅射产额, 溅射粒子的能谱、角分布和源深度分布, 以及上述各量与 α 粒子入射角的关系。结果表明, 在考虑入射 α 粒子随能量及入射角的分布^[1]后, 其平均总溅射产额为 0.375。由于 100 keV 以上的 α 粒子溅射产额很低, 仅就溅射而言, 聚变 α 粒子的高能分量并不是一个严重的问题。

PACC: 7920N; 6180J; 6140; 5220H

一、引 言

聚变 α 粒子对第一壁的辐照损伤是聚变堆研究的重要课题之一。损伤的主要表现形式为溅射和表面起泡 (blister), 都属于面损伤。溅射不仅腐蚀和破坏第一壁材料的表面^[2], 而且溅射出来的粒子是等离子体的中重杂质的主要来源。溅射粒子由于鞘势的作用有可能返回第一壁产生自溅射, 造成溅射的恶性循环^[3]。

近年来, 基于两体碰撞近似的蒙特-卡罗方法已成为研究固体靶表面辐照效应的重要手段^[4], 它有如下的一些特点: 1. 固体中的原子碰撞过程本身就是一种随机过程, 因此用蒙特-卡罗方法模拟研究这一过程具有物理图象清晰、直观性强等优点。2. 与蒙特-卡罗方法相比, 解析计算的一个严重缺点是它必须引入一些近似才能使计算继续下去, 特别是对于非均匀介质如表面附近的复杂物理现象的研究, 解析计算是十分困难的。而对于蒙特-卡罗方法, 这些都是比较容易处理的。3. 通常聚变堆的设计对溅射产额等数据要求的

* 国家 863 高技术项目资助的课题。

精度不高,而蒙特-卡罗方法特别适于这一类计算,因为这一方法可以很快收敛得到数量级正确的近似结果。

聚变堆的设计一般都采用不锈钢作第一壁材料。不锈钢包含有 Fe, Cr, Ni 等多种元素,我们的任务是计算多成份靶的溅射问题。目前还没有可靠的有关不锈钢溅射的实验数据可供计算的依据,这里采用如下的计算原则:首先计算 α 粒子对 Fe, Cr, Ni 等单种元素的溅射产额,并与实验编评数据^[9]比较,以确定计算中用到的一些重要参数如原子位移能等。再基于这些调节好的参数计算 α 粒子对不锈钢的溅射过程。

二、物理模型与计算方法

D, T 聚变 α 粒子的初始能量为 3.5 MeV, 因此需要计算从溅射阈能(约 25 eV)到 3.5 MeV 能量范围内 α 粒子对不锈钢的总溅射产额、部分溅射产额、溅射粒子的能谱、角分布和源深度分布等。在托卡马克一类磁约束装置中,由于带电粒子在磁场中的拉莫尔运动, α 粒子轰击第一壁的入射角多数是很大的,还需要研究上述各有关溅射的物理量对入射角的依赖关系。另外,许多研究都表明^[6],多晶模型与无定形靶的结果是很相近的,方向效应已被抵消,因此在计算中假定不锈钢是一种均匀混合的无定形多成份靶。本文应用基于两体碰撞近似的蒙特-卡罗方法研究溅射。在这一近似中,入射离子及级联碰撞所产生的移位原子在固体靶中的轨迹由一系列准弹性原子-原子碰撞所决定的折线构成。离子及级联原子的能量损失包括与核碰撞的弹性散射能量转移(核损失)和与电子的非弹性散射能量损失两部分。计算核损失的原子-原子相互作用为 Thomas-Fermi 势的 Moliere 展开式^[8],用经典力学公式计算散射角。对于多成分靶,电子损失用布喇格公式(Bragg's rule)计算。

粒子能量在级联碰撞过程中按如下的方式传递。当入射粒子与靶原子相碰时,如果靶原子接受到的能量 T 大于移位阈能 E_d (约为 10 eV 数量级)时,则该原子成为一个移位原子,以 $T - E_b$ 的动能开始运动, E_b 为靶原子的点阵结合能,约为 1—3 eV 数量级。移位原子可能与其它靶原子发生碰撞,产生下一代移位原子,从而形成原子碰撞级联。当运动粒子的能量降低到截止能量 E_c 时, E_c 通常取为 5 eV 左右,则停留在靶内。采用平面表面势垒模型(planar potential model),当运动原子到达靶表面,并且其外法线方向的能量大于表面结合能 U_0 时,就形成反射(对入射粒子)或溅射(对移位靶原子)。 U_0 一般取为固体的升华能,约为 4—7 eV 数量级。对于化合物靶,表面结合能还要考虑分子束缚的贡献^[7]

$$U_0(A) = H_s(A) + H_f(AB), \quad (1)$$

式中 $H_s(A)$ 为 A 元素的升华能, $H_f(AB)$ 为 AB 分子的形成热。

蒙特-卡罗方法模拟碰撞过程包括以下 4 个主要步骤:

1. 射程抽样。每两次碰撞间离子的运动轨迹假定为直线。第 i 种粒子的飞行自由程为

$$l(i) = \bar{l}(i) \ln \xi, \quad (2)$$

式中 ξ 为 0—1 间均匀分布的随机数, $\bar{l}(i)$ 为平均飞行自由程^[9]

$$\bar{l}(i) = 1/\left(\pi \left[\sum_j D_j P_{\max}^2(i, j) \right]\right), \quad (3)$$

式中 D_j 为靶样品中 j 元素的数密度(个/ $\text{\AA}^3$),

$$P_{\max}(i, j) = 1/\left\{\pi^{1/2} \left[\sum_k D_k \left(\frac{\sigma(i, k)}{\sigma(i, j)} \right)^{3/2} \right]^{1/3} \right\} \quad (4)$$

为 i, j 原子之间的最大碰撞参数. $\sigma(i, j)$ 为元素 i 与 j 的经典碰撞截面

$$\sigma(i, j) = k_N \frac{z_i z_j}{[z_i^{2/3} + z_j^{2/3}]^{1/2}} \frac{(M_i + M_j)}{M_i E_i}, \quad (5)$$

k_N 为比例系数, z_i 为 i 元素的电荷数, M_i 为质量数, E_i 为运动能量.

2. 成分抽样. 确定运动粒子 i 与靶中何种元素发生碰撞, 这是一个离散型随机变量的抽样问题. i 与 j 元素发生碰撞的概率为

$$P_d(i, j) = c_j \sigma(i, j) / \sum_k c_k \sigma(i, k), \quad (6)$$

式中 c_k 为靶中 k 元素数密度的百分含量.

3. 碰撞参数抽样. i - j 原子的碰撞参数由如下的随机抽样确定:

$$P(i, j) = \sqrt{\xi} P_{\max}(i, j). \quad (7)$$

碰撞参数确定后, 就可以直接计算散射角和动能转移 T , 确定反冲原子是否移位原子.

4. 确定碰撞后粒子的运动方向. 按各向同性分布抽样散射方位角, 并根据已知的人射方向和散射角, 就可以确定碰撞后粒子的运动方向, 包括移位原子的运动方向.

为了缩短计算时间, 本文采用直接计算 Moliere 势散射角的方法^[10], 替代常用的“散射三角形”计算质心系散射角的方法^[11]. 此外, 由于那些能量低又远离表面的运动粒子对溅射贡献的概率很小, 因此在计算中定义一个与能量有关的最大深度 $R^{[8]}$,

$$R = (\varepsilon^{0.3} + 0.1)^3 / Na^2, \quad (8)$$

式中 N 为原子总密度, a 为平均屏蔽长度, $\varepsilon = \frac{a \bar{M}_1 E}{z_1 \bar{z}_2 e^2 (M_1 + \bar{M}_1)}$, $\bar{M}_1$ 和 $\bar{z}_2$ 分别为用数密度作权重的靶原子平均质量数和电荷数. 当能量为 E 的粒子的深度大于 $2R$ 时, 就不再跟踪. 采用以上两个措施, 程序的计算速度提高了近一倍.

三、计算结果

基于上述的物理模型及计算方法, 参考 TCIS 程序^[12]和 TRIM. SP 程序^[8], 建立了用蒙特-卡罗方法计算离子轰击多成份靶的计算机程序^[9], 并用于目前的计算. 本文没有考虑靶的动态效应, 即大剂量离子轰击引起靶成分的改变, 以及辐照引起的表面偏析现象. 这些都是我们今后进一步研究的课题. 如文献[1]指出, 由等离子体边界逸出轰击第一壁的 α 粒子具有很宽的能量分布. 本文的计算中考虑两种入射条件, 即单一能量的人射及具有一定能量分布的人射. 表 1 给出的能量分布是当等离子体电流 $I = 5\text{MA}$, 而其它条件与文献[1]相同时的 α 粒子能谱. 在以下计算中, 除非另加注明, 否则用“具有复

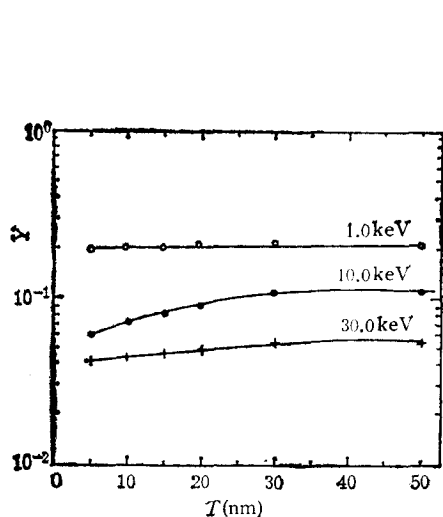


图1 溅射产额 Y 与靶厚 T 的关系曲线 α 粒子法向入射 Ni 靶; $\alpha = 0^\circ$; ${}^4\text{He} \rightarrow \text{Ni}$

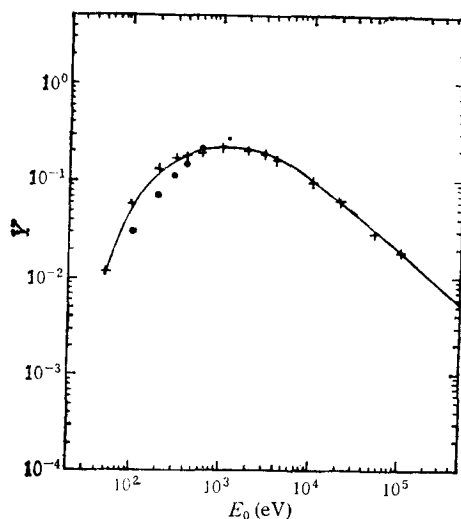


图2 不同入射能量 α 粒子轰击 Fe 靶的溅射产额曲线 $\cdot$ 为实验值^{[1)}; + 为计算值; E_0 为入射能量; Y 为溅射产额; $\alpha = 0^\circ$; ${}^4\text{He} \rightarrow \text{Fe}$

合能谱的 α 粒子”一词专指这一组参数。

1. 物理参数的选择 以下着重对固体靶厚度及移位阈能进行讨论。

选择合适的靶厚进行模拟计算是十分必要的, 这是因为较高能量的人射粒子会穿透薄靶, 导致溅射产额偏低; 反之, 对过厚的固体靶进行模拟会增加计算时间。用 3 种不同能量 (1, 10, 30 keV) 的 ${}^4\text{He}$ 离子轰击不同厚度的 Ni 靶, 计算其溅射产额, 结果如图 1 所示。由图 1 可看到, 溅射产额 Y 随靶的厚度 T 增大而增加, 并且在约 30 nm 处趋于饱和。因此, 在以下的计算中都取靶厚为 30 nm。

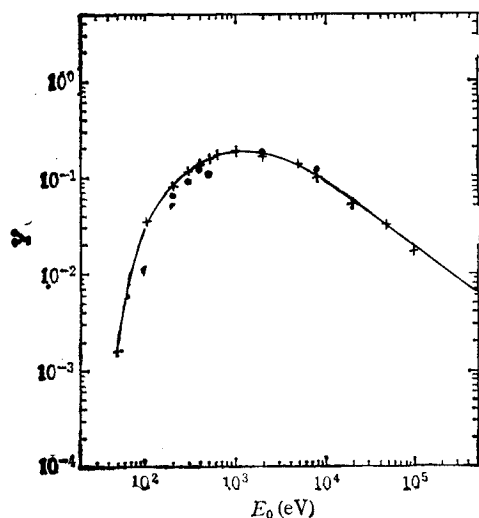


图3 Cr 靶; ${}^4\text{He} \rightarrow \text{Cr}$; 图注同图 2

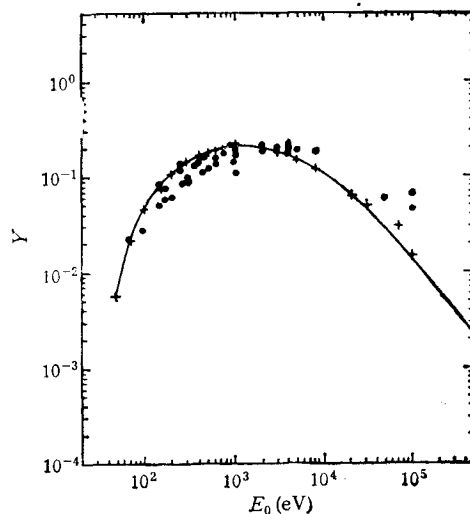


图4 Ni 靶; ${}^4\text{He} \rightarrow \text{Ni}$; 图注同图 2

表 1 从等离子体边界逸出的 α 粒子的能量分布 (等离子体电流 $I = 5\text{MA}$, 其它参数同文献[1])

能量范围 (keV)	0—1	1—5	5—15	15—30	30—50	50—100	100—3500
百分含量 (%)	2.02	15.93	37.02	25.33	8.43	4.18	7.09

原子移位阈能 E_d 的选取对计算的溅射产额值有较大的影响。为此, 计算不同能量的 α 粒子对单种元素靶 Fe, Cr 和 Ni 的溅射产额, 通过与已有的实验值^[5]相比较(见图 2—图 4), 确定各自的移位阈能值。其结果分别为 $E_d(\text{Fe}) = 8.0\text{eV}$, $E_d(\text{Cr}) = 4.2\text{eV}$, $E_d(\text{Ni}) = 4.56\text{eV}$ 。

2. 部分溅射产额 图 5 为不同能量的 α 粒子轰击不锈钢 ($\text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.18}\text{Ni}_{0.09}$) 靶的部分溅射产额。由图 5 可看到, 在入射能量约 1keV 处, 不锈钢三种成分的部分溅射产额都达到最大值, 这与单种成分的计算结果(图 2—图 4)是一致的。文献[13]给出部份溅射产额比的解析表达式

$$\frac{Y_i}{Y_j} = \frac{c_i}{c_j} \left(\frac{M_i}{M_j} \right)^{2m} \left(\frac{U_0(j)}{U_0(i)} \right)^{1-2m}, \quad (9)$$

式中 m 为势参数 ($0 \leq m < 1$)。由于 Fe, Cr 和 Ni 三种元素的质量数和表面结合能十分接近, 因此它们的部分溅射产额比主要由各自的百分含量决定。图 5 中当入射能量大于 100eV 时三条曲线的形状是十分相似的。由图 5 还可以看出, 对 Fe, Cr 和 Ni 三种成份的溅射阈能 E_{th} 都为 25eV , 这与公式^[14]

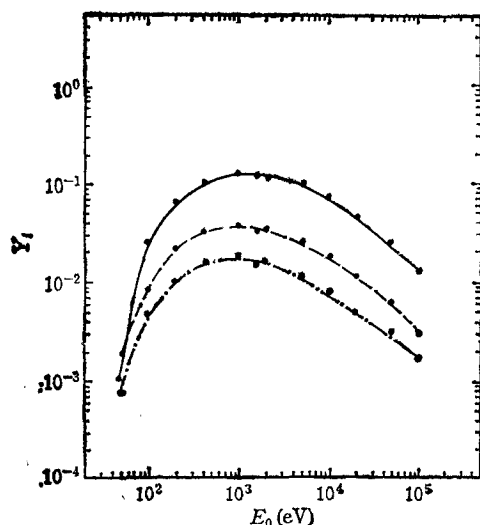


图 5 不同入射能量 α 粒子法向轰击不锈钢靶的部分溅射产额曲线 ${}^4\text{He} \rightarrow \text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.18}\text{Ni}_{0.09}$; E_0 为入射能量; $\alpha = 0^\circ$; — 为 Fe; --- 为 Cr; -.- 为 Ni

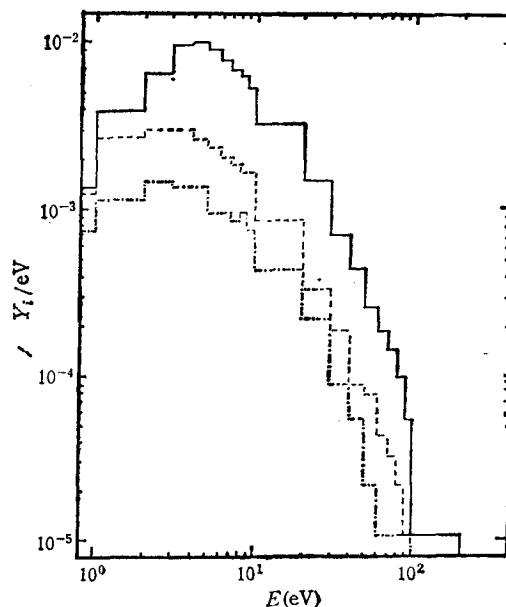


图 6 溅射 Fe, Cr, Ni 粒子的能量分布曲线 归一到部份溅射产额 $1.0\text{keV } {}^4\text{He} \rightarrow \text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.18}\text{Ni}_{0.09}$; $\alpha = 0^\circ$; — 为 Fe; --- 为 Cr; -.- 为 Ni

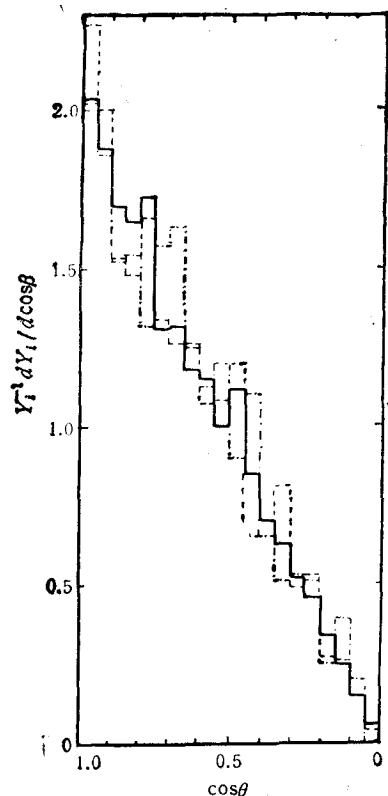


图7 具有能量分布(见表1)的 α 粒子法向轰击不锈钢靶产生的 Fe, Cr, Ni 溅射粒子的角分布
 ${}^4\text{He} \rightarrow \text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.18}\text{Ni}_{0.09}$; $\alpha = 0^\circ$; ——为 Fe;
 -----为 Cr; -.-.-为 Ni

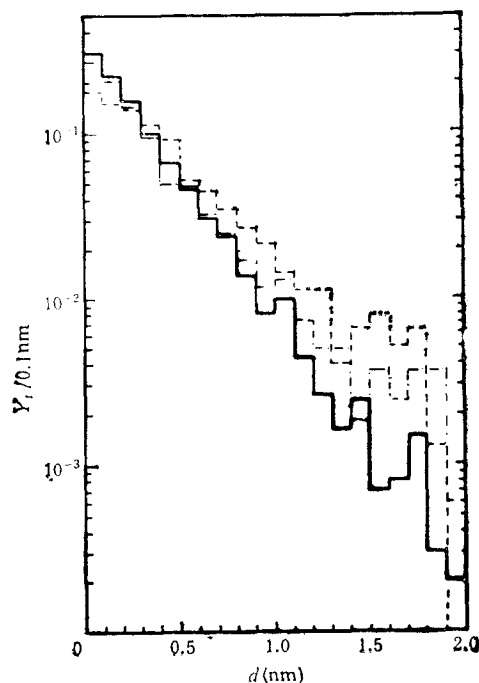


图8 10 keV α 粒子法向轰击不锈钢靶, 溅射粒子 Fe, Cr, Ni 的深度来源分布
 10 keV ${}^4\text{He} \rightarrow \text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.18}\text{Ni}_{0.09}$; ——为 Fe; -----为 Ni; -.-.-为 Cr

$$E_{th} = \frac{U_0}{\alpha(1-\alpha)} \quad (10)$$

估算的结果十分接近, 式中 $\alpha = 4M_1M_2/(M_1 + M_2)^2$.

3. 溅射粒子的能谱 图6为 1 keV α 粒子法向轰击厚度为 30 nm 的不锈钢靶 ($\text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.18}\text{Ni}_{0.09}$) 产生的溅射粒子的能谱。从图6可以看出, 三种成份的能谱基本相似, 溅射粒子主要分布在 10 eV 以下的低能区域, 峰值位置都在 2—4 eV 附近, 这与文献[8]指出的峰值出现在 $0.6 U_0$ 处是一致的。

4. 溅射粒子的角分布与深度来源分布 图7给出具有复合能谱分布的 α 粒子轰击不锈钢靶产生的溅射粒子的角分布。由图7可见, 它们都呈现弱 $\cos\theta$ 分布^[9], θ 为极角, 这与线性级联理论的结果^[13]是一致的, 因为 Fe, Cr 和 Ni 三种成份都是中重元素。

图8为 10 keV α 粒子法向轰击不锈钢时, 溅射粒子的深度来源分布。由图8可见, 溅射粒子主要出自近表面的第一至第三原子层。因此, 溅射主要改变材料的表面性质。

5. 溅射与入射角的关系 图9为 1 keV α 粒子以不同的入射角度轰击不锈钢靶时的总溅射产额与部份溅射产额。它们的变化趋势是相似的, 即溅射产额随入射角的增加而

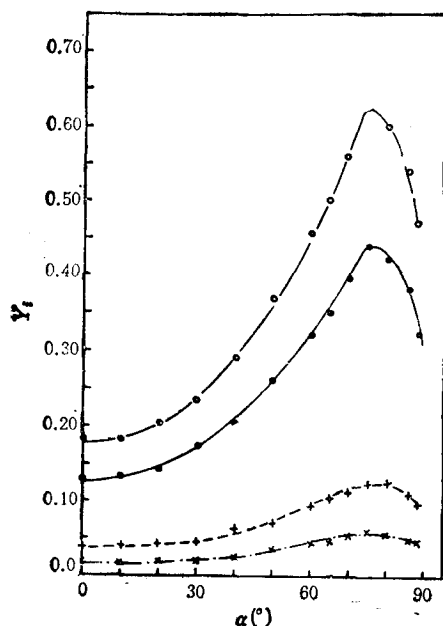


图9 1 keV α 粒子轰击不锈钢靶, 溅射产额 Y_i 与入射角 α 的关系
1 keV ${}^4\text{He} \rightarrow \text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.13}\text{Ni}_{0.09}$; Y 为总溅射产额;
——为 Y ; ——为 Y_{Fe} ; ----为 Y_{Cr} ; -·-·-
为 Y_{Ni}

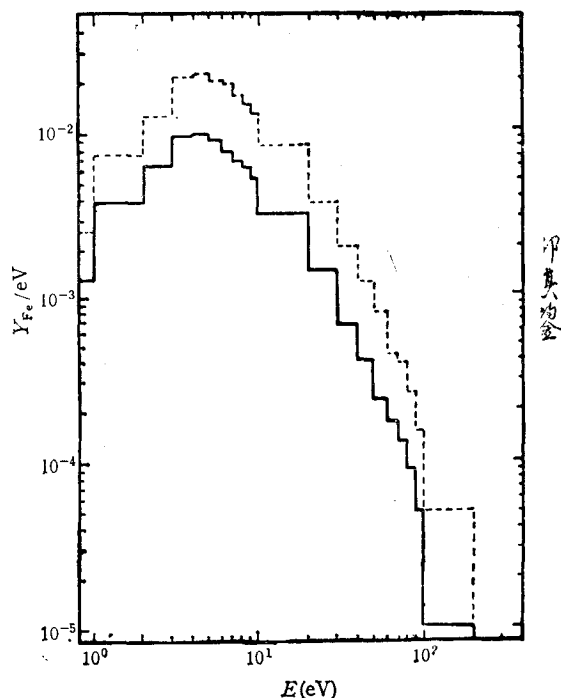


图10 1 keV α 粒子轰击不锈钢靶, 入射角分别为 0° (—) 和 60° (---) 的溅射 Fe 粒子的能量分布
1 keV ${}^4\text{He} \rightarrow \text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.13}\text{Ni}_{0.09}$

增大,直到入射角非常大(大于 75°),即近乎擦边入射时,溅射产额才降下来。这一现象在物理上是很容易理解的。有两个相互竞争的机制在此起作用,随着入射角的增大,一方面,移位原子大多产生在贴近靶表面附近的位置上,易于发生溅射;另一方面,入射粒子很容易在慢化前由表面逸出形成反射粒子,这种反射粒子要带走一部份入射能量,从而使移位原子的总数减少。后者在大角擦边入射时变得特别严重,导致 75° 以后溅射产额的明显下降。

图10—12为1 keV α 粒子轰击不锈钢靶,当入射角分别为 0° 和 60° 时,溅射 Fe 粒子的能谱、角分布和深度来源分布的比较。由图10可看出,两个能谱的形状相近(注意,能谱是归一到产额, 60° 入射的产额高于 0° 的值),但大角入射时高能分量(大于 100 eV 部分)的相对比例增加,即能谱略有变硬的趋势。这是因为当大角度入射时,移位原子集中到表面层附近,一些高能移位原子在慢化前就由表面逸出。图11—图12显示,随着入射角的增加,溅射粒子的角分布略有偏向大角度的趋向,这是因为入射粒子带有较大的水平动量分量;同时,溅射粒子来源的深度分布变浅。

6. 平均溅射产额 溅射产额与入射粒子的能量及入射角有关,因此为了估算聚变 α 粒子引起的平均溅射产额,假定轰击第一壁的 α 粒子随能量的分布如表1所示,随入射角的分布是按立体角各向同性,即其密度分布为 $f(\theta) = \sin \theta d\theta$,用蒙特-卡罗方法模拟具

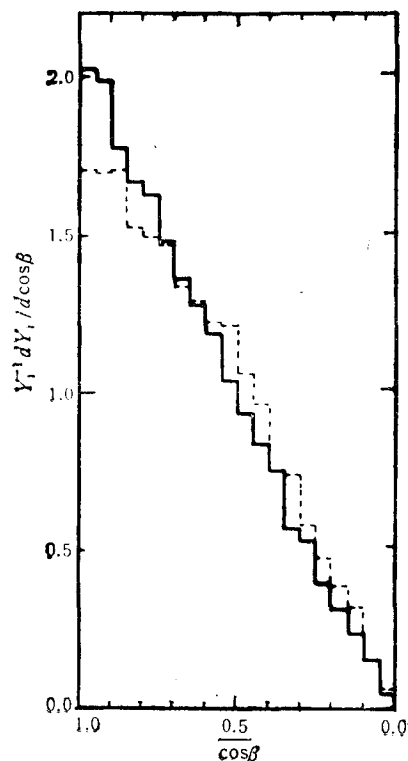


图 11 溅射 Fe 粒子的角分布 图注同图 10

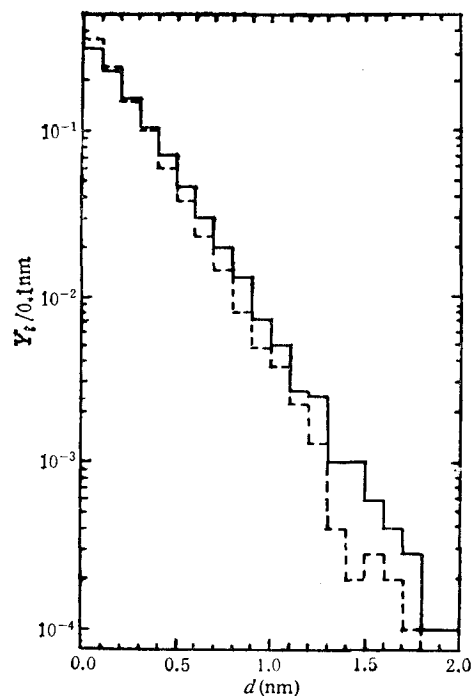


图 12 溅射 Fe 粒子的深度来源分布 图注同图 10

有上述分布的 α 粒子对不锈钢 ($\text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.18}\text{Ni}_{0.09}$) 的平均溅射产额, 其结果为 0.262 (Fe), 0.075 (Cr) 和 0.038 (Ni), 总平均溅射产额为 0.375. 文献[1]指出, 1 MW/m^2 的第一壁负载相当于入射 α 粒子通量约为 $4 \times 10^{17}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$ (不考虑偏滤器), 则 α 粒子引起的杂质从第一壁的释放量为 $1.5 \times 10^{17}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$. 如果聚变堆的大半径为 $R = 5.64 \text{ m}$, 小半径为 $a = 1.41 \text{ m}$, 则第一壁的总表面积约为 314 m^2 , α 粒子引起的杂质总释放量为 $1.2 \times 10^{20}/\text{s}$.

四、结 论

1. 带有高能分量的聚变 α 粒子对第一壁的辐照损伤是聚变堆设计中一个特有的且是严重的问题. 应用基于两体碰撞近似的蒙特-卡罗方法, 本文研究 α 粒子引起的溅射. 与现有实验数据的比较表明, 通过在合理范围内选择参数, 应用此方法是有可能对轻带电粒子引起的溅射现象给出正确的描述.

2. 从溅射的角度, 轰击第一壁的 α 粒子具有高能分量并不是一个严重的问题. 能量为 100 keV 以上的 α 粒子的溅射产额是很低的, 比 $1-10 \text{ keV}$ 的小一个数量级.

3. 在磁约束装置中, 大部份 α 粒子以较大的人射角打到第一壁上. 在 $0^\circ-75^\circ$ 入射角范围内, 溅射产额随入射角增大而增加.

4. 溅射粒子的角分布呈弱 $\cos\beta$ 型. 当增大入射角时, 角分布偏向大角度方向.

5. 溅射粒子的能量大多在 10 eV 以下的低能区, 峰值约在 2—4 eV 处。随入射角度的增大, 溅射粒子的能谱略有变硬的趋势。

6. 当考虑入射 α 粒子随能量及入射角的分布后, 每个 α 粒子在不锈钢上的平均溅射产额约为 0.375, 这等价于负载为 1 MW/m² 的第一壁的 α 粒子引起的杂质释放量为 $1.5 \times 10^{17}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$ 。

- [1] 霍裕昆等, 本刊本期。
- [2] Wang wen-Min, J. Roth and K. Behrisch, *Nucl. Instr. and Meth.*, B42(1989), 29.
- [3] 王震遐, 核技术, 12(1989), 549.
- [4] J. P. Biersack, *Nucl. Instr. and Meth.*, B27(1987), 21.
- [5] N. Matsunami *et al.*, *Atomic Data and Nuclear Data Table*, 31(1986), 1.
- [6] M. T. Robinson, Oak Ridge Nat. Lab., Report ORNL-4556, (1970).
- [7] W. Eckstein and J. P. Biersack, *Appl. Phys.*, A37(1985), 95.
- [8] J. P. Eckstein and W. Eckstein, *Appl. Phys.*, 34(1984), 73.
- [9] 潘正瑛等, 物理学报, 39(1990), 319.
- [10] J. Sielanko and W. Sziszko, *Surf. Sci.*, 161(1985), 101.
- [11] J. P. Biersack and L. G. Haggmark, *Nucl. Instr. and Meth.*, 174(1980), 257.
- [12] 崔福斋, 清华大学学报, 25(1985), 48.
- [13] P. Sigmund, *Nucl. Instr. and Meth.*, B27(1987), 1.
- [14] J. Roth, J. Bohdansky and A. P. Martinelli, *Radiation Effects*, 48(1980), 213.

MONTE-CARLO STUDIES OF RADIATION DAMAGE INDUCED BY FUSION (II)

SPUTTERING

SHAO QI-YUN CHEN JIAN-XIN WU SHI-MING PAN ZHENG-YING HUO YU-KUN

Department of Nuclear Science, Fudan University, Shanghai, 200433

GAO XING-HUA

Institute of Plasma Physics, Academia Sinica, Hefei, 230031

(Received 1 June 1990)

ABSTRACT

By means of the monte-carlo method based on the binary collision approximation, this paper investigates sputtering caused by fusion α -particles at the first wall of stainless steel ($\text{Fe}_{0.73}\text{Cr}_{0.18}\text{Ni}_{0.09}$). The parameters adjusted in accordance with a comparison of the calculated and measured sputtering yields of the elements Fe, Cr and Ni were used to study the partial sputtering yields, energy distribution, angular distribution and depth distribution of origin of the sputtered particles, as well as the dependence of those quantities with the angles of incidence. The results show that by taking into account the energy and incidence angle distribution, the averaged sputtering yield of α -particles in stainless steel is about 0.375, and the higher energy component of α -particle plays minor role so far as sputtering is concerned.

PACC: 7920N; 6180J; 6140; 5220H