



基于蒙特卡罗模拟研究锆钛酸铅镧材料的 neutron 辐照损伤

王丽敏 段丙皇 许献国 李昊 陈治军 杨坤杰 张硕

Simulation of neutron irradiation damage in lead lanthanum zirconate titanate by Monte Carlo method

Wang Li-Min Duan Bing-Huang Xu Xian-Guo Li Hao Chen Zhi-Jun Yang Kun-Jie Zhang Shuo

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 076101 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20212041

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212041>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

锆钛酸铅薄膜的铁电疲劳微观机理及其耐疲劳性增强

Micromechanism of ferroelectric fatigue and enhancement of fatigue resistance of lead zirconate titanate thin films

物理学报. 2021, 70(14): 146302 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202196>

含复杂近邻的二维正方格子键渗流的蒙特卡罗模拟

Monte Carlo simulation of bond percolation on square lattice with complex neighborhoods

物理学报. 2022, 71(6): 066401 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211757>

氮化镓在不同中子辐照环境下的位移损伤模拟研究

Simulated research on displacement damage of gallium nitride radiated by different neutron sources

物理学报. 2020, 69(19): 192401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200064>

热辐射输运问题的高效蒙特卡罗模拟方法

An efficient Monte Carlo simulation method for thermal radiation transport

物理学报. 2020, 69(2): 029501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191315>

基于虚拟源原理的源边界参数蒙特卡罗反演技术

Source boundary parameter of Monte Carlo inversion technology based on virtual source principle

物理学报. 2019, 68(23): 232901 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191095>

特征 γ 射线谱分析的蒙特卡罗模拟技术

Monte Carlo simulation technology based on characteristic γ -ray spectrum analysis

物理学报. 2020, 69(11): 112801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200279>

基于蒙特卡罗模拟研究锆钛酸铅镧材料的 中子辐照损伤*

王丽敏¹⁾ 段丙皇²⁾ 许献国²⁾ 李昊¹⁾ 陈治军¹⁾ 杨坤杰³⁾ 张硕^{1)†}

1) (兰州大学, 核科学与技术学院, 兰州 730000)

2) (中国工程物理研究院, 电子工程研究所, 绵阳 621900)

3) (烟台大学, 核装备与核工程学院, 烟台 264005)

(2021年11月3日收到; 2021年12月6日收到修改稿)

锆钛酸铅镧 ($\text{Pb}_{0.94}\text{La}_{0.06}\text{Zr}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}\text{O}_3$, PLZT) 具有良好的介电和储能性质, 是高效、高能量密度电容元件和存储器件的基体材料. 为研究该材料的中子辐照损伤, 首先基于 Geant4 程序包模拟了能量为 1—14 MeV 中子辐照锆钛酸铅镧 (PLZT) 材料产生的反冲原子能谱, 然后根据产生的反冲原子种类和最大能量, 利用二元碰撞方法模拟了不同能量的离子在 PLZT 中产生的位移损伤 (包括空位和间隙原子), 最后根据反冲原子能谱和对应能量离子在材料中产生的缺陷数目计算了不同能量的中子在 PLZT 材料中产生缺陷浓度以及分布. 结果发现, 对于 1—14 MeV 能区的快中子而言, 其在厚度为 3 cm 的 PLZT 材料中产生的缺陷数目近似与中子能量无关, 约为 460 ± 120 空位/中子. 辐照损伤在 3 cm 厚度内随深度的增加而略有减小, 总体变化小于 50%, 该减小主要是由于中子的反散射导致. 本工作为计算中子在材料中的位移损伤提供了一种方法, 同时模拟结果可为研究 PLZT 基电子器件的中子辐照效应提供指导.

关键词: 锆钛酸铅镧, 蒙特卡罗模拟, 中子辐照损伤, 缺陷浓度

PACS: 61.80.Hg, 61.80.Az, 02.70.Uu, 61.72.jd

DOI: 10.7498/aps.71.20212041

1 引言

服役于航空领域和核能设施周围的电子设备不可避免地受到大气中子或堆中子的辐照, 评价电子器件基体材料的中子辐照损伤对器件的加固具有重要的指导意义^[1-3]. 随着电子器件不断向小型化、高集成度方向的发展, 高效、高密度储能材料成为新型电子元件开发的研究热点^[4-6]. 锆钛酸铅镧 (PLZT) 反铁电材料由于具有良好的介电和储能性质, 在电容元件和存储器件方面具有重要的应用价值^[7]. 因此, PLZT 反铁电材料的中子辐照损伤研究是该类电子器件辐照效应研究的基础.

锆钛酸铅镧是由 PbZrO_3 , PbTiO_3 和 La_2O_3 固溶而成的四元系固溶体材料. 由于 PbZrO_3 和 PbTiO_3 材料具有良好的可混合性, 同时 La_2O_3 在该混合系统具有较强的固溶性, 使得锆钛酸铅镧材料可以由众多元素比例构成. 以不同元素比例构成的 PLZT 材料可以具有不同的晶体结构和电学特性, 包括铁电相、顺电相以及反铁电相. Haertling 等^[8] 于 1971 年测量了室温下 PLZT 材料的相图, 结果表明 PLZT 材料在高 Pb 和高 Zr 情形下可形成反铁电相, 本工作研究的 PLZT 材料的化学表达式为: $(\text{Pb}_{0.94}\text{La}_{0.06})(\text{Zr}_{0.96}\text{Ti}_{0.04})\text{O}_3$, 即 Pb, La, Zr, Ti 和 O 的原子数目比为 94:6:96:4:300, 该 PLZT 材料为反铁电材料.

* 国家自然科学基金 (批准号: 11875154, 12005200) 和中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: lzujbky-2019-13) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhangshuo@lzu.edu.cn

实验上直接测量 PLZT 材料的中子辐照损伤具有一定挑战. 原因在于在低中子注量 ($< 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) 下, 一般材料中难以产生电子显微镜下可直接观测的缺陷浓度. 而对于高中子注量实验, 由于受到中子源强度和材料活化的限制, 该实验的开展周期过长, 且实验难度较大. 出于以上原因, 目前实验上大多通过测量辐照后 PLZT 材料的极化、介电响应、退火特性以及相变温度等物理性质的变化来推断中子辐照导致材料损伤^[9-12]. 该类测量可以较好地反映中子辐照对材料某些性质的影响, 然而为了更好地理解材料性质变化的机理以及中子辐照对 PLZT 材料性质的影响, 仍需要对中子辐照在 PLZT 材料产生的缺陷浓度和分布进行研究, 而目前该材料在中子辐照下的缺陷浓度和分布数据报道相对较少.

计算机模拟可以摆脱实验条件的束缚, 通过已有的中子与材料的作用截面和材料辐照损伤模型可直接对 PLZT 材料的中子辐照损伤过程进行模拟, 进而对材料的中子辐照损伤进行评价. 材料的中子辐照损伤模拟包括两个部分: 中子的输运过程和材料的损伤过程. 随着评价中子截面数据的发展, 中子的输运模拟越来越趋于精确. 常用的材料辐照损伤模拟方法包括: 分子动力学和二元碰撞方法等^[13-18]. 对于 PLZT 材料而言, 由于其元素组分复杂, 依赖于原子相互作用势场的分子动力学方法在模拟 PLZT 材料辐照损伤时, 其准确度可能会大大降低. 二元碰撞方法在模拟离子运动中具有广泛应用^[19,20], 虽然其本身精度稍低于分子动力学, 但在复杂成分、结构材料的辐照损伤模拟中具有更广泛的适用性, 且许多研究表明该方法能够很好地描述材料损伤^[21,22]. 因此, 结合中子输运和二元碰撞模拟是研究组分、结果复杂材料的中子辐照效应的有效途径.

本文基于蒙特卡罗思想, 首先利用中子输运模拟获得中子辐照在 PLZT 材料中产生的初级反冲原子能谱, 然后根据该反冲原子能谱, 利用二元碰撞程序模拟不同能量的离子在材料中产生的缺陷数目, 最后根据反冲原子能谱和对应能量离子在材料中产生的缺陷数目计算中子辐照损伤. 本工作将基于上述方法研究 1—14 MeV 中子在 PLZT 材料中产生的缺陷数目以及损伤的分布, 为 PLZT 基电子器件的快中子辐照效应研究奠定基础.

2 模型设计

中子对物质的损伤主要通过次级效应产生. 最终对 PLZT 材料直接造成损伤的次级粒子主要包括: 反冲原子和次级光子. 然而, 光子对物质造成的位移损伤远远小于反冲原子的作用, 因此本工作中主要考虑反冲原子对 PLZT 材料的位移损伤.

2.1 中子输运模拟

本工作利用欧洲核子中心开发的 Geant4 (Geometry and tracking, 几何和跟踪)^[23-25] 软件包二次编程, 模拟中子在 PLZT 材料中的输运和作用过程. 在 Geant4 软件包中, 中子与物质的相互作用被分为 4 种形式: 弹性散射、非弹性散射、中子俘获以及裂变反应. 其中, Geant4 中定义的非弹性散射包括: (n, n') , $(n, 2n)$, (n, p) , (n, α) 等在内的 36 个反应道. 各反应道的选择随中子的能量变化而变化, 以 ^{208}Pb 为例, 其非弹性散射涉及的反应道包括 $^{208}\text{Pb}(n, 2n)^{207}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}(n, 3n)^{206}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}(n, n')^{208}\text{PB-L1}$, $^{208}\text{Pb}(n, n')^{208}\text{PB-L2}$, $^{208}\text{Pb}(n, n')^{208}\text{PB-L3}$ 等, 其中 (n, n') 中的 $^{208}\text{PB-L1}$, L2 和 L3 分别表示 ^{208}Pb 的第一、第二和第三激发态. 以上给出的几种反应道均为有阈反应, 即仅当中子能量达到某一阈值后反应道才能开启. 例如对于 $^{208}\text{Pb}(n, n')^{208}\text{PB-L1}$ 反应, 其反应阈值约为 2.6 MeV. 一般而言, 将靶原子激发到更高能级的反应阈值会更大. 为了精确模拟中子的输运过程, 采用 Geant4 提供的高精度中子输运模型, 该模型是基于评价截面数据构建的. 本工作采用评价中子截面数据由 JEFF-3.3 中子截面数据库^[26,27] 提供.

本工作根据材料成分 (Pb, La, Zr, Ti 和 O 元素) 和组分比例构建 PLZT 材料, 组成材料的每种元素的按其自然丰度的核素比例构成. 构建的材料尺寸为 $10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm} \times 3 \text{ cm}$, 并定义其厚度方向 (3 cm) 为 Z 轴方向. 为了保证入射中子产生的所有次级粒子能够充分与材料作用, 本工作将中子的入射位置限定在材料 XY 平面的中心 $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$ 区域内, 每个中子在 XY 平面内的初始位置在该区域内随机抽样. 构建的材料结构示意图如图 1 所示, 中子辐照区域远远小于材料尺寸, 以保证发生散射的中子仍可与材料发生相互作用.

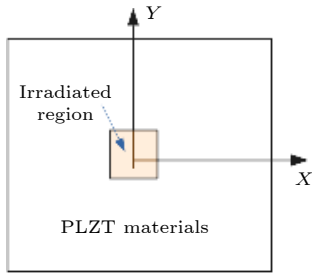


图 1 模拟中材料的中子辐照位置示意

Fig. 1. Schematic diagram of neutron irradiated region in the simulations.

为了获得不同能量的快中子与 PLZT 材料作用的反冲原子能谱, 本工作分别模拟能量 1—14 MeV (1 MeV 为步长) 中子以垂直图 1 所示的平面方向入射 PLZT 材料后, 中子与物质的相互作用过程. 为了保证结果的统计性, 对于每个能量, 本工作模拟了 10^5 个中子入射材料后的作用过程. 在模拟过程中, 本工作记录了中子与材料相互作用产生的反冲原子的位置和能量等信息, 并据此获得了 PLZT 材料中不同元素产生的反冲原子能谱及其分布信息.

2.2 反冲原子损伤模拟

本工作利用 TRIM (Transport of ions in matter) 程序 [28,29] 提供的完全级联碰撞模型模拟反冲原子对材料的损伤过程. 在该模型中, 离子与物质原子的碰撞过程完全通过二元碰撞理论实现. 本工作假设由中子辐照产生的反冲原子与具有相同能量的离子在物质中产生的位移损伤一致, 原因在于: 1) 在材料中运输的载能原子或离子由于与物质原子的电荷交换, 其电荷态迅速达到平衡, 该平衡态不一定为中性态; 2) 位移损伤主要由载能原子 (或离子) 的原子核与物质原子核碰撞导致.

当具有能量为 E 、原子序数 Z_1 的初级反冲原子离开其晶格位置时, 首先会在反冲原子发生的位置形成一个空位缺陷. 该载能原子将在物质中继续运动并迅速达到电荷平衡, 形成载能离子. 当该载能离子与原子序数为 Z_2 的物质原子碰撞后, 载能离子的能量变为 E_1 , 被碰原子的能量为 E_2 . 如果 E_1 和 E_2 均大于该物质原子的离位阈能 E_d , 则认为由于离子碰撞, 在碰撞位置形成一个新的空位缺陷. 同时物质原子将成为次级离子, 其反冲能量为 E_2 减去物质原子在晶格位置的结合能 E_b . 如果 $E_1 > E_d$ 且 $E_2 < E_d$, 则碰撞在该处不产生任何缺陷, 物

质原子能量 E_2 通过声子振动耗散. 如果 $E_1 < E_d$, $E_2 > E_d$ 且 $Z_1 = Z_2$, 则认为碰撞在该位置发生同种原子替换过程, 并不产生任何缺陷. 如若 $E_1 < E_d$, $E_2 > E_d$ 但 $Z_1 \neq Z_2$, 则认为离子 Z_1 在此处沉积形成一个间隙原子, 同时由于物质原子 Z_2 的离位而形成形成一个空位. 如果 $E_1 < E_d$ 且 $E_2 < E_d$, 则认为在该碰撞位置形成一个 Z_1 的间隙原子. 根据上述碰撞过程, 程序跟踪了原始离子和由于碰撞形成的所有次级离子的运动过程, 并记录了所有碰撞过程中产生的缺陷.

由于目前未有研究对锆钛酸铅镧材料中的离位阈能进行报道, 因此本工作按 TRIM 推荐值对材料中各组分元素的离位阈能进行设定, 即 Pb, La, Zr, Ti 为 25 eV, O 为 28 eV. 本工作在不同离位阈能 (25-50 eV 区间) 下模拟了反冲原子在材料中造成的缺陷, 根据模拟估计由离位阈能造成的二元碰撞结果的误差约为 20%.

为了模拟不同类型 (包括: Pb, La, Zr, Ti 和 O)、不同能量的反冲原子对物质的损伤, 本工作根据 14 MeV 中子在 PLZT 材料中产生的最大反冲原子能量, 以 2.5 keV 或 5 keV 为步长分别模拟了不同类型、不同能量的反冲原子在材料中产生的缺陷数目. 对于每种类型、每个能量的反冲原子, 模拟了 1000 个离子在材料中产生的缺陷数目, 并对结果求平均以减小由于离子作用的随机性而引入的统计误差.

3 模拟结果与分析

3.1 反冲原子能谱

通过中子输运过程模拟, 本工作分别获得了 1—14 MeV (步长为 1 MeV) 中子在 PLZT 材料中产生的不同类型的反冲原子 (Pb, La, Zr, Ti 和 O) 能谱, 分别记为: $\Phi_{\text{Pb}}(E_n, E')$, $\Phi_{\text{La}}(E_n, E')$, $\Phi_{\text{Zr}}(E_n, E')$, $\Phi_{\text{Ti}}(E_n, E')$ 和 $\Phi_{\text{O}}(E_n, E')$, 其中 E_n 为中子能量, E' 为反冲原子能量. 作为实例, 图 2(a) 和 2(b) 分别给出了中子能量为 3 MeV 和 10 MeV 情况下, 中子与材料作用产生不同类型原子的反冲能谱. 图中蓝色、绿色、黑色、蓝绿色和红色点线分别代表 Pb, La, Zr, Ti 以及 O 的反冲原子能谱. 从图中所示能谱看出, 对于所有类型的反冲原子而言, 其能量分布向低能聚集. 该分布特点符合弹性散射的一般规律, 在弹性散射过程中, 大多数中子发生小角度散

射, 产生低能反冲原子; 大角度散射可产生较大能量的反冲原子, 然而大角度散射概率一般较小, 因此能量分布会向低能偏聚.

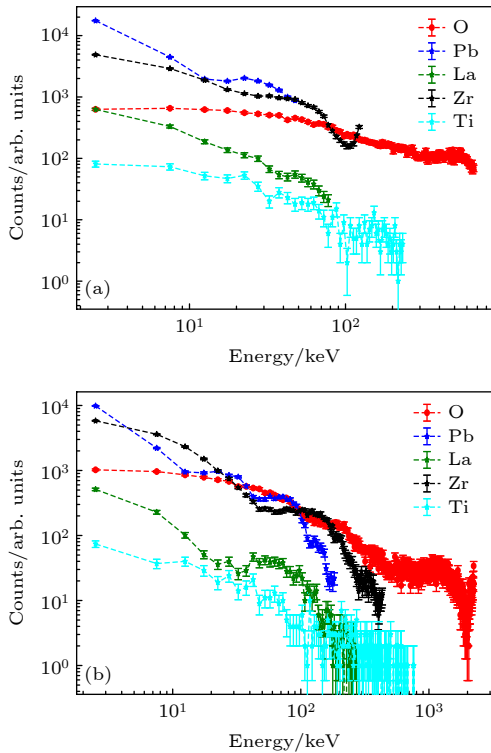


图 2 3 MeV(a) 和 10 MeV(b) 中子辐照 3 cm 厚 PLZT 材料产生的初级反冲原子能谱
 Fig. 2. Energy spectra of primary kinetic atoms produced by 3 MeV (a) and 10 MeV (b) neutron irradiation in PLZT with a thickness of 3 cm.

反冲原子能谱的最大能量 (E_{\max}) 决定了能谱的范围, 从模拟结果和图 2 可以看出, 反冲原子的最大能量与中子能量和反冲原子的类型有关. 在反冲原子类型相同的情况下, 中子能量越大, 反冲原子能谱的最大能量越大. 例如, 图 2(b) 中 10 MeV 中子在 PLZT 材料中产生的反冲 O 原子的最大能量为约 2200 keV; 而图 2(a) 中 3 MeV 中子产生的反冲 O 原子的最大能量为约 660 keV; 在中子能量相同时, 不同类型的反冲原子的最大能量从高到低依次为: $E_{\max}^{(O)} > E_{\max}^{(Ti)} > E_{\max}^{(Zr)} > E_{\max}^{(La)} > E_{\max}^{(Pb)}$, 该趋势从图 2(a) 和 2(b) 中均可得出.

在弹性散射过程中, 中子与物质作用产生的最大反冲能量可以由 (1) 式计算

$$E_{\max}^{(i)} = \frac{4mM_i}{(m + M_i)^2} E_n, \quad (1)$$

其中, $E_{\max}^{(i)}$ 为元素 i 的最大反冲能量, m 和 M_i 分

别为中子和元素 i 的质量, E_n 为中子能量. 根据 (1) 式, 可以发现以下两点规律: 1) 中子能量越大, 反冲原子最大能量越大; 2) 对于 PLZT 材料涉及的元素而言, 质量越小, 反冲原子最大能量越大. (1) 式的计算结果与本工作模拟结果基本一致, 说明在中子输运模拟中, 由弹性散射产生的反冲原子数目占据主导.

为了验证上述结论, 在模拟中分别统计了由弹性散射作用和非弹性散射作用产生反冲原子的数目, 结果如图 3 所示. 红色点线为不同能量下弹性散射过程引起的反冲原子数目, 蓝色点线为非弹性散射导致的反冲原子数目. 从图 3 可以看出, 对于能量为 1—14 MeV 的快中子而言, 由弹性散射作用产生的反冲原子数目远大于非弹性散射反冲原子, 该结果证明在不考虑该能区中子与材料原子的共振反应的前提下, 由弹性散射作用产生的反冲原子占主导. 然而, 值得说明的是, 此处弹性散射产生的反冲原子包括发生非弹性散射后的中子再次与物质发生弹性散射作用产生的反冲原子. 此外, 从图 3 可以看出, 随着中子能量的增大, 弹性散射作用产生的反冲原子数目呈现减小趋势, 而非弹性散射产生的反冲原子数目在 4—8 MeV 附近最多.

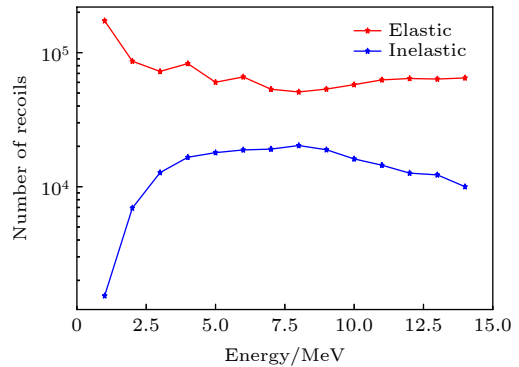


图 3 弹性散射和非弹性散射过程引起的反冲原子数目
 Fig. 3. Number of recoils caused by elastic scattering and inelastic scattering.

图 4 对应左侧 Y 轴红色点线给出了 1—14 MeV 中子辐照 3 cm 厚 PLZT 材料产生的总的反冲原子数目, 从图 4 可以看出, 1 MeV 中子与 3 cm 厚 PLZT 材料作用产生的反冲原子数目明显大于 2—14 MeV 中子, 即 1 MeV 中子与 PLZT 材料的作用截面大于 2—14 MeV 中子. 同时, 在模拟中发现, 部分中子在辐照 3 cm 厚的 PLZT 材料时并未与任何材料原子发生相互作用而直接穿出,

图 4 对应右侧 Y 轴的蓝色点线是 10^5 个中子辐照材料时直接穿出而未与材料发生任何作用中子数目. 从图 4 可以看出, 对于 1 MeV 的中子而言, 约 20% 的中子直接穿出材料; 对于 2—14 MeV 的中子而言, 约 40%—60% 的中子直接穿出. 该结果与反冲原子数目结果一致表明, 相比与 2—14 MeV 中子, 1 MeV 中子与 PLZT 材料的作用截面更大, 发生相互作用的中子数目更多.

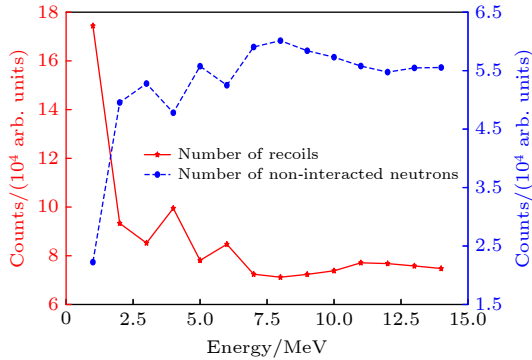


图 4 1—14 MeV 中子辐照 3 cm 厚 PLZT 材料产生的反冲原子数目 (对应左侧 Y 轴的红点线) 和未与材料发生作用的中子数目 (对应右侧 Y 轴的蓝色点线)

Fig. 4. Number of recoils (corresponding to the red dotted line and the left Y-axis) and the number of neutrons without interaction (corresponding to the blue dotted line and the right Y-axis) during irradiation of neutrons with energies from 1 to 14 MeV in PLZT with a thickness of 3 cm.

3.2 离子损伤

图 5 展示了不同能量、类型的离子在 PLZT 材料中产生的空位缺陷数目 $N_r^{(k)}(E')$, 其中 k 分别代表 Pb, La, Zr, Ti 和 O 五种元素, E' 为离子能量. 本工作采用的二元碰撞模型中, 程序分别跟踪了材料中空位和间隙原子的产生过程. 在考虑初级反冲原子产生的空位缺陷的前提下, 空位缺陷的数目等于间隙原子数目与离开材料的反冲原子数目之和. 对于中子辐照而言, 穿出材料的反冲原子的数目基本可以忽略, 即中子辐照引起的空位缺陷数目与间隙原子数目一致. 因此, 将以辐照在材料中产生的空位缺陷数目代表材料的损伤.

从图 5 可以看出, 对于任何类型的离子而言, 随着能量的增大, 其在材料中产生的缺陷数目也随之增大. 然而, 在相同能量下, O 离子 (图中黑线) 产生的辐照缺陷数目明显小于 Ti 离子 (图中绿线), 同时 Ti 离子产生的辐照缺陷数目小于 Pb, La

和 Zr 离子 (分别为图中红线、蓝线和蓝绿色线). 该结果与离子的质量有关, 相同能量下, 质量数较小的离子在 PLZT 材料中产生的缺陷数目相对较少. 对于 O 离子, 从图 5 可以看出, 当其能量高于约 800 keV 后, 由于电子能损的增大和核能损的减小, 其在材料中产生的缺陷数目明显增速变缓.

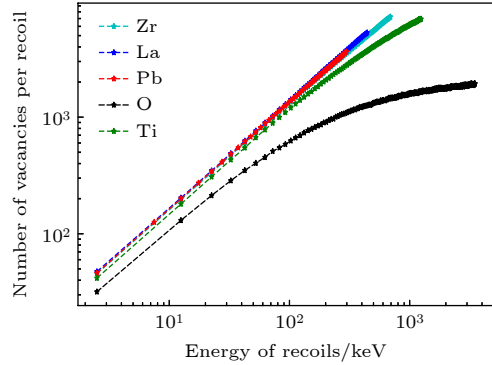


图 5 不同能量、类型的离子在 PLZT 材料中产生的空位缺陷数目

Fig. 5. Number of vacancies produced by different types of ions in PLZT.

3.3 中子损伤以及深度分布

根据 1—14 MeV 中子在 PLZT 材料中产生的反冲原子能谱和不同能量反冲原子在材料中引起的缺陷数目, 采用 (2) 式对中子在 3 cm 厚的 PLZT 材料中产生的缺陷数目进行了计算:

$$N_d(E_n) = \sum_{k=1}^5 \int_0^{E_{\max}^{(k)}} \Phi_k(E_n, E') N_r^{(k)}(E') dE', \quad (2)$$

其中 $k = 1, 2, 3, 4$ 和 5 , 分别代表 Pb, La, Zr, Ti 和 O 五种元素, $\Phi_k(E_n, E')$ 是能量为 E_n 的中子产生的第 k 种元素的反冲原子能谱, $N_r^{(k)}(E')$ 代表能量为 E' 的第 k 种元素离子在 PLZT 材料中产生的缺陷数目.

图 6 中蓝色点线展示了 1—14 MeV 中子在 3 cm 厚 PLZT 材料中平均每个中子产生空位缺陷数目, 其中缺陷数目的误差约为 20%, 主要来源于由二元碰撞结果引入的误差. 从图 6 可以看出, 1 MeV 中子在材料中可产生更多的辐照缺陷. 在考虑计算误差的前提下, 该能区的中子在 PLZT 材料中产生的缺陷数目随对中子能量不敏感. 采用直线对该能区内中子的位移缺陷进行拟合, 结果如图中红色虚线所示. 根据拟合结果发现平均每个中子在 3 cm 厚的 PLZT 材料中产生的空位缺陷数

目约为: 460 ± 120 个. 从反冲原子数目结果看 (见图 4), 1—6 MeV 中子虽然产生的反冲原子数目稍多, 然而由于其反冲原子的平均能量较低, 因此最终 1—14 MeV 中子在 3 cm 厚的 PLZT 材料中产生的缺陷数目随中子能量变化不大.

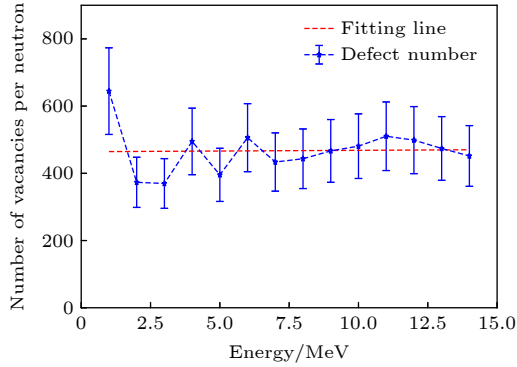


图 6 1—14 MeV 中子在 3 cm 厚 PLZT 材料中平均每个中子产生的空位缺陷数目
Fig. 6. The average number of vacancy defects induced by irradiation of neutrons with energies range from 1 to 14 MeV in PLZT material with a thickness of 3 cm.

根据本工作的研究结果, 在已知中子注量的前提下, 可以对该能区范围内的中子辐照 PLZT 材料时产生的缺陷浓度进行计算. 以中子注量为 $1 \times$

10^{15} cm^{-2} 为例, 其在 3 cm 厚的 PLZT 材料中产生的空位缺陷数目约为 4.6×10^{17} 个, 考虑空位和间隙原子两种缺陷, 总缺陷浓度为 $3.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. 该缺陷浓度远远小于 PLZT 物质原子浓度约 10^{22} cm^{-3} , 缺陷浓度与物质原子的浓度比约为 10^{-5} , 因此常规的电子显微镜以及 X 射线衍射等技术难以观察到 PLZT 材料在 $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ 注量下的辐照缺陷. Kulikov 等^[11] 根据 $1 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}$ 中子辐照 PLZT 后材料极化性质的变化估计了辐照导致的氧空位缺陷浓度, 约为物质原子的 0.0015, 利用本工作结果计算, 其总的空位浓度为 0.0035, 两个结果在同一量级. Kulikov 等^[11] 的研究中采用的中子能量与本工作不同, 且他们给出的缺陷浓度仅为氧空位浓度. 在考虑以上因素影响的情况下, 可以认为本工作结果与 Kulikov 等^[11] 的结果一致.

为了进一步研究中子辐照缺陷在材料内的深度分布, 将 3 cm 厚的材料等分为 30 份 (每份厚度为 1 mm), 并根据 (2) 式计算在每个厚度内的辐照缺陷数目. 在辐照损伤位置统计时, 认为反冲原子发生的位置即为缺陷产生的位置. 在计算过程中, 并未考虑反冲原子运动导致的位置变化, 原因在于反冲原子在材料中的射程相对于统计厚度而言可

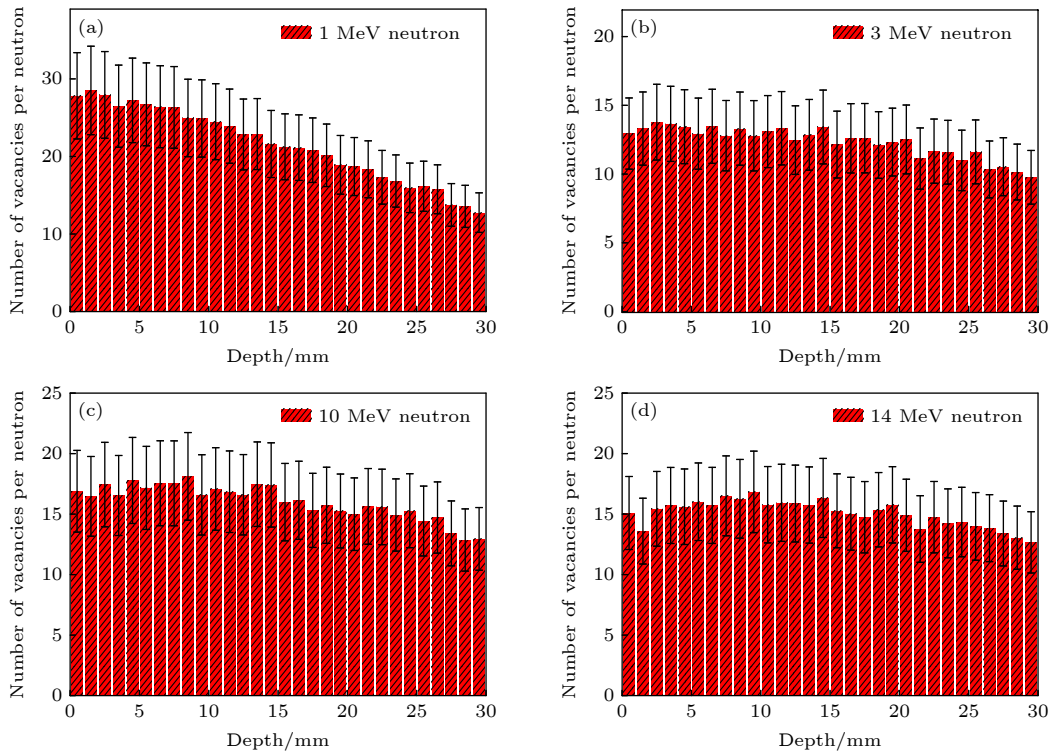


图 7 平均每个 1 MeV(a), 3 MeV(b), 10 MeV(c) 和 14 MeV(d) 中子在 PLZT 材料中产生的空穴缺陷数目随深度的变化
Fig. 7. The depth distribution of vacancies produced by neutrons with energy of 1 MeV (a), 3 MeV (b), 10 MeV (c) and 14 MeV (d) in PLZT.

以忽略. 即使对于本工作中涉及的射程最大的反冲原子(约 3 MeV O 离子)在 PLZT 材料中的射程仍在 3 μm 范围之内, 因此所有反冲原子的射程远远小于统计厚度. 图 7(a)—7(d) 分别给出了 1, 3, 10 和 14 MeV 中子在 PLZT 材料中平均每个中子产生的辐照缺陷数目随深度的变化. 从图 7(a) 可以看出, 对于 1 MeV 的中子, 其在材料中产生的辐照缺陷数目随着深度的增大呈现近线性减少的趋势, 在中子穿过 3 cm 厚的 PLZT 材料后, 其在材料中产生的缺陷数目减少近 50%; 而对于 3, 10 和 14 MeV 中子而言, 其在材料中产生的缺陷数目也随着深度的增大而有所变化, 但在穿过 3 cm 厚的 PLZT 材料后缺陷数目的下降幅度小于 20%. 由于 1—14 MeV 中子在 3 cm 厚 PLZT 材料中缺陷数目随深度出现一致性下降的趋势, 因此认为 3 cm 厚 PLZT 在该能区快中子辐照条件下不能看作“薄靶”.

为了保证与 PLZT 材料发生作用的中子为本工作设定的单能中子, 对厚度为 1 mm 的 PLZT 材料的中子辐照进行了模拟, 并计算了 1—14 MeV 中子辐照在 1 mm 厚 PLZT 材料中引起的缺陷数目. 在 1 mm 厚度的材料中, 即使对于本工作中截面最大的 1 MeV 中子, 与材料发生相互作用的数目仅占入射中子数目的约 5%, 同时绝大部分与材料作用的中子仅发生单次作用. 在该情况下中子在材料中产生的缺陷数目如图 8 中蓝色点线所示, 图中红色点线表示在 3 cm 厚的 PLZT 中, 中子在平均每 mm 厚的材料中产生的空位缺陷数目. 从图 8 可以看出, 快中子在 3 cm 厚靶中引起的平均位移损伤比 1 mm 薄靶结果大 20% 左右. 该结果与中子在材料中的输运过程有关, 由于 PLZT 材料组分复杂, 因此, 影响中子与物质作用过程的因素也十分复杂. 通过分析认为导致厚靶中平均位移损伤浓度增大的原因有: 1) 快中子与材料作用具有较大的 $(n, 2n)$ 反应截面, 该作用过程可以使中子数目在厚靶中增多, 从而使其在厚靶中引起的缺陷数目增多; 2) 中子在厚靶中的散射可以增大中子在材料中的运动路径; 3) 非弹性散射 (n, n') 过程可以使该能区的中子迅速慢化, 而慢化后的中子与物质有较大的作用截面. 由此可以看出, 中子在厚靶材料中产生的位移损伤与中子的输运过程密切相关.

中子位移损伤在 3 cm PLZT 材料中随深度略有下降的原因是由于中子在 PLZT 中的大角度散

射(甚至背散射)导致. 通过查询中子与 O 作用的微分截面数据库^[26,30], 发现 1 MeV 中子与 O 原子作用具有较大的大角度散射截面, 因此 1 MeV 中子在 PLZT 物质中运动过程中会有较大概率发生大角度散射, 发生背散射的中子将会在材料的表层产生更多反冲原子, 因此导致材料中损伤随着深度出现一致性减少的趋势.

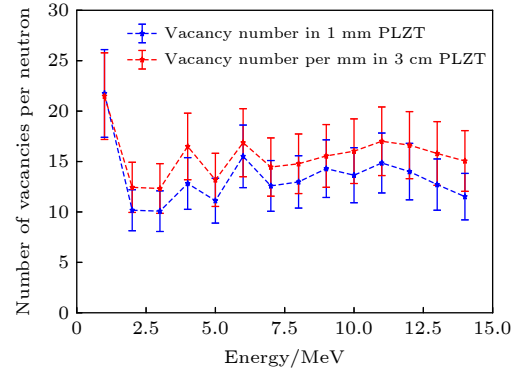


图 8 1—14 MeV 中子在 1 mm PLZT 材料和 3 cm PLZT 材料中每毫米内的空位缺陷数目

Fig. 8. Number of vacancies per millimeter produced by neutrons with energies from 1 to 14 MeV in PLZT materials with different thicknesses (1 mm and 3 cm).

此外, 从图 8 可以看出, 除 1 MeV 中子在薄靶中产生的位移损伤明显较大之外, 2—14 MeV 中子无论在 3 cm 厚靶还是在 1 mm 薄靶中引起位移损伤随能量的变化不大. 因此, 在模拟精度范围内可近似认为该能区中子在薄靶中产生的位移损伤几乎不随能量的变化而变化.

4 结 论

本工作结合中子输运和材料损伤两种蒙特卡罗模拟方法模拟了 1—14 MeV 能量中子在 PLZT 材料中产生的反冲原子能谱和不同能量、类型的反冲原子在材料中引起的缺陷数目, 并根据模拟结果计算了 1—14 MeV 中子在 3 cm 厚 PLZT 材料中产生的空位缺陷数目和深度分布以及在 1 mm 的“薄靶”中的产生的缺陷数目. 结果表明, 1) 中子在材料中产生的反冲原子主要由弹性散射过程产生, 其在材料中产生的位移损伤分布与中子与材料的作用过程密切相关; 2) 在模拟精度范围内, 1—14 MeV 中子在 1 mm 和 3 cm 厚 PLZT 材料中产生的位移缺陷数目随中子能量变化不敏感, 其在

3 cm 材料中产生的空位缺陷数目约为 460 ± 120 个/中子; 3) 中子辐照损伤在 3 cm 厚 PLZT 材料内随深度略有下降, 该下降是由于中子在材料内的大角度散射导致. 本工作提供了一种计算复杂材料中子辐照损伤的方法, 同时给出了 1—14 MeV 中子在 1 mm—3 cm 厚辐照缺陷的数目. 该结果可用来估计 1—14 MeV 区间内任意能谱中子在 1 mm—3 cm PLZT 材料中产生的位移损伤, 结果可为基于 PLZT 材料的电子器件的中子辐照损伤研究提供帮助.

本研究工作得到兰州大学超算中心支持.

参考文献

- [1] Xie F, Zang H, Liu F, He H, Liao W L, Huang Y 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 192401 (in Chinese) [谢飞, 臧航, 刘方, 何欢, 廖文龙, 黄煜 2020 物理学报 **69** 192401]
- [2] Hazdra P, Záhlava V, Vobecký J 2014 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **327** 124
- [3] Sharma R K, Hazdra P, Popelka S 2015 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **62** 534
- [4] Rauls M B, Dong W, Huber J E, Lynch C S 2011 *Acta Mater.* **59** 2713
- [5] Kumar A, Prasad V V B, Raju K C J, James A R 2016 *J. Alloys Compd.* **654** 95
- [6] He H, Tan X 2007 *J. Am. Ceram. Soc.* **90** 2090
- [7] Hao X, Zhai J, Kong L B, Xu Z 2014 *Prog. Mater. Sci.* **63** 1
- [8] Haertling G H, Land C E 1971 *J. Am. Ceram. Soc.* **54** 1
- [9] Sternberg A, Krumina A, Sprogis A, Rubulis A, Grinvalds G, Shebanov L, Weber H W, Klima H, Schwabl H, Dindun S, Ulmanis U 1992 *Ferroelectrics* **126** 233
- [10] Bittner R, Humer K, Weber H W, Cakare L, Sternberg A, Lesnyh D. A, Kulikov D V, Trushin Y V 2002 *Integr. Ferroelectr.* **47** 143
- [11] Kulikov D V, Trushin Y V, Kharlamov V S, Bittner R, Schmidt A A 2000 *Proc. SPIE* **4348** 264
- [12] Sternberg A, Kundzins K, Zauls V, Aulika I, Akare L, Bittner R, Weber H, Humer K, Lesnyh D, Kulikov D 2004 *J. Eur. Ceram. Soc.* **24** 1653
- [13] Nordlund K, Zinkle S J, Sand A E, Granberg F, Averbach R S, Stoller R E, Suzudo T, Malerba L, Banhart F, Weber W J, Willaime F, Dudarev S L, Simeone D 2018 *J. Nucl. Mater.* **512** 450
- [14] Nordlund K 2019 *J. Nucl. Mater.* **520** 273
- [15] Robinson M T, Torrens I M 1974 *Phys. Rev. B* **9** 5008
- [16] Zhang S, Nordlund K, Djurabekova F, Granberg F, Zhang Y, Wang T S 2017 *Mater. Res. Lett.* **5** 433
- [17] Djurabekova F G, Pugacheva T S, Umarov F F, Yugay S V 2000 *International Conference on Ion Implantation Technology-2000 (Cat. No. 00EX432)*, 17–22 Sept. 2000 228
- [18] Zhang S, Wang B W, Zhang L M, Liu N, Wang T S, Duan B H, Xu X G 2021 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54** 245104
- [19] Zhang S, Nordlund K, Djurabekova F, Zhang Y, Velisa G, Wang T S 2016 *Phys. Rev. E* **94** 043319
- [20] Zhang S, Pakarinen O H, Backholm M, Djurabekova F, Nordlund K, Keinonen J, Wang T S 2017 *J. Phys.: Condens. Matter.* **30** 015403
- [21] Bukonte L, Djurabekova F, Samela J, Nordlund K, Norris S A, Aziz M J 2013 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **297** 2
- [22] Klaver T P C, Zhang S, Nordlund K 2017 *J. Nucl. Mater.* **492** 113
- [23] Agostinelli S, Allison J, Amako K, et al. 2003 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **506** 250
- [24] Allison J, Amako K, Apostolakis J, et al. 2016 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A* **835** 186
- [25] Allison J, Amako K, Apostolakis J, et al. 2006 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **53** 270
- [26] Nuclear Energy Agency <http://www.oecd-nea.org/dbdata/jeff/jeff33/>
- [27] Mendoza E, Cano-Ott D, Koi T, Guerrero C 2014 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **61** 2357
- [28] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, Littmark U 1985 *The Stopping and Range of Ions in Matter* (Pergamon, New York: Pergamon Press)
- [29] Ziegler J F <http://www.srim.org/>
- [30] Chadwick M B, Herman M, Obložinský P, et al. 2011 *Nucl. Data Sheets* **112** 2887

Simulation of neutron irradiation damage in lead lanthanum zirconate titanate by Monte Carlo method*

Wang Li-Min¹⁾ Duan Bing-Huang²⁾ Xu Xian-Guo²⁾ Li Hao¹⁾
Chen Zhi-Jun¹⁾ Yang Kun-Jie³⁾ Zhang Shuo^{1)†}

1) (*School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China*)

2) (*Institute of Electronic Engineering, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*)

3) (*College of Nuclear Equipment and Nuclear Engineering, Yantai University, Yantai 264005, China*)

(Received 3 November 2021; revised manuscript received 6 December 2021)

Abstract

Lead lanthanum zirconate titanate (PLZT) has a broad application prospect for energy storage devices with high energy density, since it possesses excellent dielectric and energy storage properties. To investigate the irradiation damage to the PLZT induced by neutrons with different energy, the primary energetic recoil spectra of each kind of element are first extracted from the transportation simulations of neutrons with energy ranging from 1 to 14 MeV, respectively. Then, the displacement damages (including vacancies and interstitial atoms) induced by each type of recoil with different energy are simulated based on the binary collision approximation method. Finally the number of defects in PLZT produced by neutrons with an energy range from 1 to 14 MeV is calculated based on the recoil energy spectra and the defect number produced by the recoils. The results show that the number of defects produced in the PLZT material with a thickness of 3 cm is approximately independent of the neutron energy for the fast neutrons with energy in a range from 1 to 14 MeV, even though the primary recoil energy spectra from neutrons with different energy are completely different. The average number of defects produced in 3-cm-thick PLZT is about 460 ± 120 vacancies/neutrons. For neutrons with energy ranging from 1 to 14 MeV, the produced defect concentration in PLZT decreases slightly with the depth increasing within a thickness of 3 cm. The difference in defect concentration in this 3 cm is in a range of 50%. This decrease is caused mainly by the fact that some of neutrons are back-scattered during transport. The average defect concentration produced by neutron irradiation in the PLZT with a thickness of 3 cm is slightly ($\sim 20\%$) higher than that in the PLZT with a thickness of 1 mm. The reason for the higher defect concentration in a thicker (3 cm) PLZT can be attributed to the following facts: (i) the (n, 2n) reactions between neutron and material can make the number of neutrons increase during transport; (ii) the scattering can make the path of neutron longer; (iii) the inelastic scattering can lead to a small number of moderated neutrons, which have a slightly larger interaction cross section with materials. This indicates the damage produced in thick PLZT is quite complicated and closely related to the process of neutron transport. This work presents a method of calculating the displacement damage of neutrons in materials, and the simulation results can provide guidance for studying the neutron irradiation effects of PLZT-based electronic devices.

Keywords: lead lanthanum zirconate titanate, Monte Carlo simulations, neutron radiation damage, concentration of defects

PACS: 61.80.Hg, 61.80.Az, 02.70.Uu, 61.72.jd

DOI: [10.7498/aps.71.20212041](https://doi.org/10.7498/aps.71.20212041)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11875154, 12005200), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities of Ministry of Education of China (Grant No. lzujbky-2019-13).

† Corresponding author. E-mail: zhangshuo@lzu.edu.cn