

# 低能质子辐射硬质硼硅玻璃的模拟计算

王庆艳<sup>1</sup>, 耿洪滨<sup>2</sup>, 李兴冀<sup>2</sup>, 张中华<sup>1</sup>, 何世禹<sup>2</sup>, 杨德庄<sup>2</sup>

(1. 哈尔滨工业大学 航天学院, 150001 哈尔滨, wqyhi03s@126.com;

2. 哈尔滨工业大学 空间材料与环境工程重点实验室, 150001 哈尔滨)

**摘要:** 为获得低能质子辐射时硬质硼硅玻璃的损伤特征, 利用蒙特卡罗(MC)计算程序——SRIM 模拟了入射质子在硬质硼硅玻璃中产生的电离和非电离能损. 模拟结果表明: 能量为 40~200 keV 的质子损伤主要发生在表面; 电离能损是能量损失的主要形式, 峰值能量为 80 keV; 非电离能损随能量降低而增大, 导致氧、硅和硼等空位型缺陷的产生; 空位分布与声子分布及慢化质子的沉积相同, 均满足 Bragg 峰型分布特性. 40~200 keV 质子的电离和非电离能损均会导致硬质硼硅玻璃微观结构的变化.

**关键词:** 质子辐射; 硼硅玻璃; SRIM; 能量损失; Bragg 峰型

中图分类号: V524.3

文献标志码: A

文章编号: 0367-6234(2011)01-0007-05

## Simulation of radiation effects on hard borosilicate glass by low-energy protons

WANG Qing-yan<sup>1</sup>, GENG Hong-bin<sup>2</sup>, LI Xing-ji<sup>2</sup>, ZHANG Zhong-hua<sup>1</sup>, HE Shi-yu<sup>2</sup>, YANG De-zhuang<sup>2</sup>

(1. School of Astronautics, Harbin Institute of Technology, 150001 Harbin, China, wqyhi03s@126.com;

2. Space Materials and Environment Engineering Laboratory, Harbin Institute of Technology, 150001 Harbin, China)

**Abstract:** To obtain damage behaviors in hard borosilicate glass, proton-induced ionizing and nonionizing energy loss were calculated by using the SRIM Monte Carlo program. The result shows that for protons with the energy range of 40–200 keV, the main damage is limited to the surface of borosilicate glass, and the ionizing energy loss, with the peak position of 80keV, is the main type of energy loss. The nonionizing energy loss increases with the decreasing of energy and induces the vacancy production of O, Si and B etc. Both vacancy distribution and phonon distribution, similar to the proton deposition, follow the property of Bragg-type curve. Both the ionizing energy loss and nonionizing energy loss by protons with the energy range of 40–200 keV can change the microstructure of hard borosilicate glass.

**Key words:** proton irradiation; borosilicate glass; SRIM; energy loss; Bragg-type curve

硬质硼硅玻璃具有优良的物理化学性能, 可用于铷光谱灯(空间铷原子钟的抽运光源)的壳材料. 铷光谱灯在轨服役期间, 会受到空间各种带电粒子的辐射作用. 其中, 质子是地球轨道空间的主要辐射源之一, 会在玻壳材料中产生能量沉积, 导致性能退化, 从而影响铷光谱灯的稳定性和可

靠性, 甚至引起铷光谱灯的工作寿命终结<sup>[1]</sup>. 研究质子对玻璃的辐照试验<sup>[2-4]</sup>多集中在二氧化硅玻璃, 对于国产硬质硼硅玻璃的辐射损伤特性却少有涉及. 以往的研究表明<sup>[5]</sup>, 高能质子一般可以忽略由非电离能损导致的位移效应的影响, 然而, 能量较低时(尤其 < 200 keV)<sup>[6]</sup>却表现出不同的损伤特征, 位移效应逐渐增强. 为此, 本文利用计算程序 SRIM 模拟了 40~200 keV 的低能质子在灯壳材料——硬质硼硅玻璃内的能量损失过程. 通过对能量沉积过程的计算研究, 旨在为设定地面辐照试验条件提供参考依据.

收稿日期: 2009-12-08.

基金项目: 国家重点基础研究发展计划资助项目(61343010306).

作者简介: 王庆艳(1976—), 女, 博士研究生;

耿洪滨(1964—), 男, 教授, 博士生导师;

张中华(1955—), 男, 教授, 博士生导师.

## 1 计算方法

SRIM 程序可以用来模拟质子在固体靶材内的能量沉积过程. 对于具有一定初始能量 ( $E_0$ ) 的入射质子, 当它在固体靶材中穿行时, 将逐渐地损失其能量, 直到最后停止在某一位置, 从而在靶材中形成辐照缺陷. 在计算过程中采用连续慢化假设, 即: 入射质子与靶原子核的碰撞采用经典两体碰撞近似<sup>[7]</sup>, 这一部分主要导致入射质子运动轨迹的曲折, 能量损失来自于核阻止过程; 而在两次两体碰撞之间认为入射质子与材料中的电子作用连续均匀地损失能量, 在这期间入射质子作直线运动, 能量损失来自于电子阻止过程, 两次两体碰撞之间的距离以及碰撞后的参数通过随机抽样得到.

### 1.1 计算参数

本文主要针对低能质子入射硬质硼硅玻璃产生的电离能损、空位及声子分布等方面进行模拟计算, 而这些计算均与入射质子在靶材中的电子/核阻止有关, 分别用电子阻止本领 ( $(dE/dx)_e$  或  $S_e(E)$ ) 和核阻止本领 ( $(dE/dx)_n$  或  $S_n(E)$ ) 来表征, 它们反映了质子在材料中的电离能损和非电离能损过程. 根据 J. F. Ziegler 等<sup>[8]</sup>的理论, 近似地认为这 2 种能量损失过程是独立的, 则入射质子在单位路径上的总能量损失  $(dE/dx)_{tot}$  或  $S_{tot}(E)$ <sup>[9]</sup> 为

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{tot} = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_n,$$

即

$$S_{tot}(E) = S_e(E) + S_n(E). \quad (1)$$

在程序计算中使用经验拟和公式计算电子阻止本领, 使用 Biersack 的普适势计算核阻止本领. 关于这 2 部分的计算公式许多文献都有详细介绍<sup>[8-12]</sup>. 由于所用靶材是化合物, 计算中将化合物看成是由各种元素在化合物中各自的比分的薄层组成. 根据文献<sup>[13]</sup>的求和规则, 化合物的阻止本领可以由各组成元素的阻止本领乘以相应的该元素在化合物中的权重因子再求和得到, 即

$$\overline{\frac{dE}{dx}} = \sum_j w_j \left(\frac{dE}{dx}\right)_j. \quad (2)$$

式中:  $\left(\frac{dE}{dx}\right)_j$  为第  $j$  种元素的平均阻止本领;  $w_j$  为在化合物中第  $j$  种元素的质量分数权重因子.

### 1.2 靶材成分

靶材为硬质硼硅玻璃, 成分如表 1 所示, 密度  $2.23 \text{ g/cm}^3$ , 相当于原子数密度  $N = 7.102 \times$

$10^{22} \text{ cm}^{-3}$ , 该材料可以被用于铷光谱灯壳 (壳厚一般为  $0.2 \text{ mm}$ ). 辐照源为质子, 能量范围选择从  $40 \sim 200 \text{ keV}$ , 垂直入射玻璃表面. 为了获得相对较好的统计结果, 模拟中计算机跟踪了  $10^6$  个质子在硬质硼硅玻璃内的运动, 入射质子对靶物质的所有损伤的相关参数都在整个跟踪过程中存储下来, 最后得到各种所需物理量的期望值和相应的统计误差.

表 1 硬质硼硅玻璃主要元素及参数

元素	原子百分比/ %	晶格束	表面束	位移能/ eV
		缚能/eV	缚能/eV	
O	65	3	2.00	28
Si	25	2	4.70	15
B	7	3	5.73	25
Na	2	3	1.12	25
Al	1	3	3.36	25

## 2 结果和讨论

本文在粒子与固体物质相互作用的理论基础上计算了  $40 \sim 200 \text{ keV}$  低能质子在硬质硼硅玻璃内的能量沉积过程, 计算结果 (归一化) 由图 1 ~ 图 5 给出.

### 2.1 质子能量对阻止本领的影响

如图 1 所示, 电离能损较非电离能损高出  $2 \sim 3$  个量级, 这说明对于本研究的能量范围而言, 质子入射硼硅玻璃过程中主要的能量损失被用于核外电子的电离和激发, 即  $S_e$  占主导地位,  $S_n$  为次要地位; 同时,  $S_e$  在到达  $80 \text{ keV}$  能量处出现极大值, 而  $S_n$  则随着质子能量增加而逐渐减小并在  $80 \text{ keV}$  之后趋于平缓. 因此, 在实际的低能质子辐射硬质硼硅玻璃试验中, 如果为了重点考察电离效应, 则入射能量可首选  $80 \text{ keV}$ .

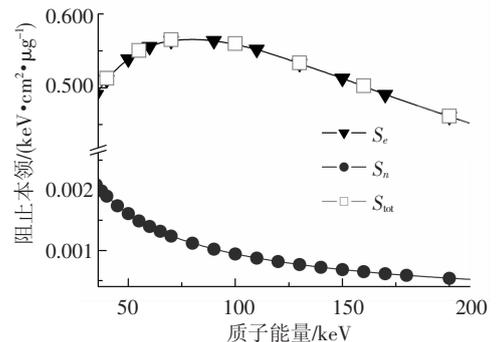


图 1 不同能量质子在硬质硼硅玻璃中的电子阻止本领、核阻止本领和总阻止本领

表 2 进一步说明了与核外电子的相互作用损失掉了入射质子的绝大部分能量, 并且入射能量

越高电离损失比重越大,即电子阻止本领越强;而空位缺陷(原子位移能损)比重的下降则说明核阻止本领随能量增加而变弱,这一点从图1中也可得到证实.未列出的能量损失部分则用于声子的产生.

表2 能量损失百分比

$E_0$ /keV	电离能损/%	原子位移能损/%
40	98.15	0.08
60	98.68	0.06
80	98.96	0.05
120	99.25	0.02
160	99.41	0.02
200	99.51	0.02

## 2.2 质子分布

随着质子进入玻璃速度逐渐变慢并停在某一深度处,由于与原子相互作用的随机性使得质子沉积具有一定的空间分布,如图2所示,分布存在峰值,并且峰区前后的质子数很少,满足 Bragg 峰型分布.随着入射能量的增加,质子的运动速度加快,其穿透能力逐渐增强,Bragg 峰值位置向内移动,即射程( $R_p$ )增大.而峰宽加宽则说明射程的标准偏差( $\Delta R_p$ )增大,即射程分散程度变大,这主要是能量增加后散射角的分布变宽引起的.射程及其标准偏差的具体数值如表3所示.

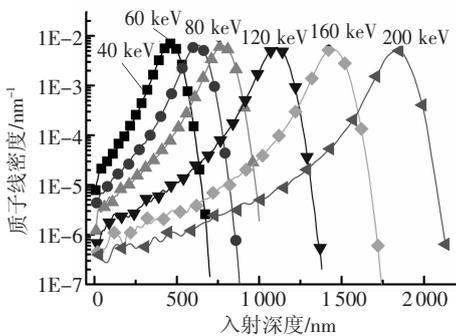


图2 不同能量的质子在硬质硼硅玻璃中的线密度分布

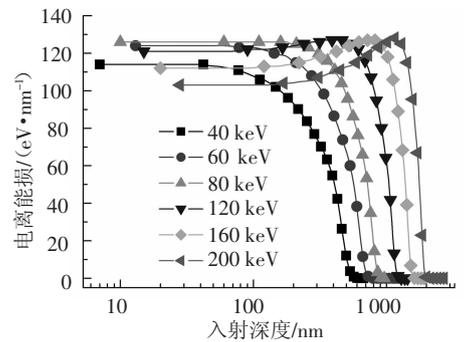
表3 不同能量质子辐射硬质硼硅玻璃时的  $R_p$  和  $\Delta R_p$ 

$E_0$ /keV	$R_p$ / $\mu\text{m}$	$\Delta R_p$ / $\mu\text{m}$
40	0.44	0.07
80	0.75	0.08
120	1.06	0.09
160	1.41	0.10
200	1.79	0.11

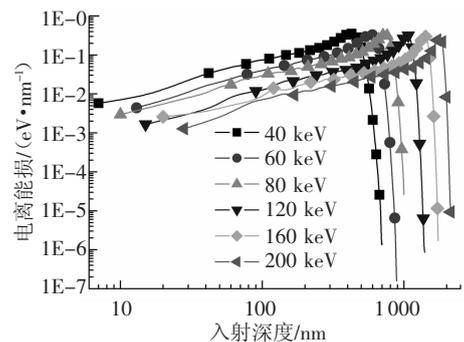
从表3可以看出,所模拟能量的入射质子在玻璃的入射深度不超过2  $\mu\text{m}$ ,这说明低能质子的射程小,其能量基本在玻璃表面很薄的一层内就被全部吸收,对表面的微观结构损伤最大.

## 2.3 电离能损分布

具体的电离能损、空位分布及声子分布则由图3~图5给出.由于电离能损是主要部分,是辐照色心形成的重要源头,可以引起玻璃光学性能的下降,如图3所示的入射质子及反冲原子产生的电离能量沉积.质子直接引起的电离能损比反冲原子导致的电离能损大3个量级,但两者随入射深度的分布差别较大,质子直接导致电离能损主要发生在质子输运过程中,在质子路径的末端急剧下降,而反冲原子引起的电离能损主要取决于质子在靶材内的沉积位置,因此峰值位置与射程相当,也满足 Bragg 峰型分布.



(a) 入射质子引起的电离能损



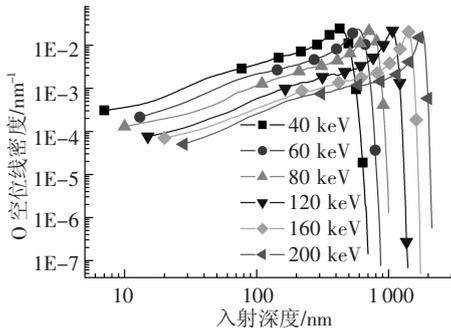
(b) 反冲原子引起的电离能损

图3 不同能量质子和反冲原子在硬质硼硅玻璃中的电离能损随入射深度的分布

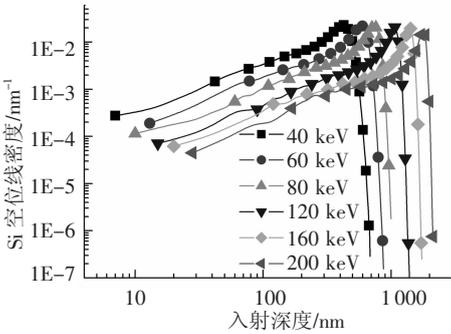
## 2.4 空位分布

除了主要的电离能损以外,非电离能损的影响不能忽略,因为非电离能损导致的位移损伤能够引起晶格原子位移,产生空位或间隙原子.当硬质硼硅玻璃用于铷光谱灯壳材料时,铷金属在玻璃内的扩散系数将随着空位数的增加而增大,铷损失加快,可导致光谱灯寿命下降.因此,图4给出了质子在硬质硼硅玻璃中空位缺陷的模拟结果.对于玻璃中不同元素对应的空位分布均相似,以3种主要元素为例(图4a(c)中的O, Si, B)来说明问题.可见,O, Si, B空位分布相同,满足 Bragg 分布,与图3(a)质子直接引起的电离损失不同,这主要是由于空位缺陷产生于入射质子与材料的原子核碰撞过程,随入射质子在材料中深入其能量不断下降,

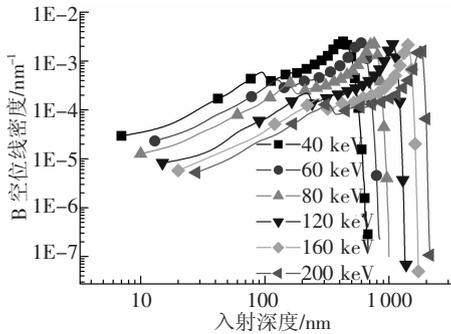
核阻止过程重要性逐渐上升,而电子阻止过程重要性逐渐下降,因此产生的空位缺陷线密度在材料深处有一个峰值,而电离能损随质子入射深度的增加不断下降.不同元素所产生的空位数量的差别,则源于其所占比例不同.图 4(d)显示了空位数随能量的增加而增加,这是因为能量增加导致质子在材料内运输的距离增大,与靶原子的碰撞机会增多.



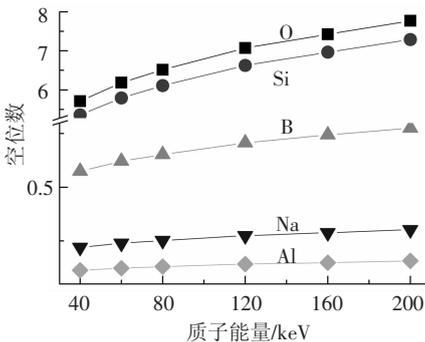
(a) O 空位缺陷浓度分布



(b) Si 空位缺陷浓度分布



(c) B 空位缺陷浓度分布



(d) 不同原子空位数随能量的增加

图 4 不同能量质子在硬质硼硅玻璃中形成的 O 空位、Si 空位、B 空位缺陷线密度分布及在入射深度内不同原子空位数随入射质子能量的变化关系

### 2.5 声子分布

在质子辐照实验过程中发现受热靶材温度会有所升高,这与靶材中热激发出声子的数目增加有关.声子产生所需的能量很低,也主要分布于质子路径的末端,如图 5 所示.但由于声子是原子本身的晶格振动,因此对于同一能量来说,反冲原子较质子产生更多的声子数,这与电离能损不同,即图 5 中高峰对应于由反冲原子导致的声子数增加,而低峰对应于质子直接引起的声子数产生.

对于所模拟的能量区间,入射质子的初始能量较高,它与靶原子相互作用主要是电子阻止过程,使玻璃成分原子电离或激发,导致电离损伤.随着质子在玻璃体内入射深度的增加,其能量逐渐降低,这时核阻止过程将起主要作用,并通过碰撞、级联和反冲碰撞,导致原子移位,留下空位和断键.随着入射质子能量进一步降低,核阻止本领急剧上升,在入射质子终止时能量损失达到峰值.

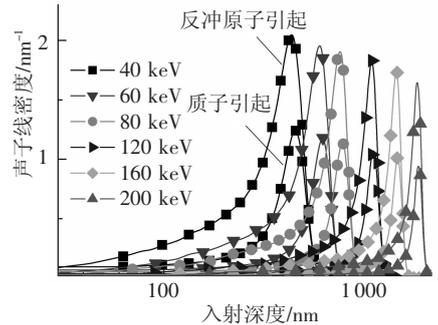


图 5 由质子和反冲原子产生的声子线密度随入射深度的分布

### 3 结 论

1) 对于能量为 40 ~ 200 keV 的质子来说,能量沉积在玻璃表面,因此样品经地面辐照试验后利用表面分析手段即可反映出样品的微观结构变化.

2) 电离能损的峰值处于 80 keV,因此,可将该能量作为地面辐照试验的首选能量.

3) 非电离能损随着能量的增加而下降,因此,为了研究位移效应的影响,选择入射质子能量越低越好.

4) 电离能损仍是能量沉积的主要形式,但非电离能损的影响不可忽视,它可以在质子射程末端产生许多空位,引起结构松弛.

5) 空位、声子和由反冲原子导致的电离能损分布均与慢化的质子在射程末端的分布特性有关,均以 Bragg 峰型存在.

## 参考文献:

- [1] WANG Q Y, GENG H B, HE S Y, *et al.* Effects of 80 keV proton radiation on the optical properties and microstructure of type - GG17 glass as rubidium lamp envelope [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2009, 267(15): 2489 - 2494.
- [2] CONSTANTINESCU B, BUGOI R, NEMTEANU M, *et al.* Studies on proton irradiation-induced modifications of KU1 quartz glass ultraviolet transmission properties [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2006, 562(2): 692 - 694.
- [3] CONSTANTINESCU B, BUGOI R, HODGSON E R, *et al.* Studies on proton irradiation-induced modifications of KU1 and KS - 4V quartz glasses ultraviolet transmission properties [J]. Journal of Nuclear Materials, 2007, 367/370: 1048 - 1051.
- [4] WEI Q, LIU H, HE S Y, *et al.* Kinetics of radiation damage of quartz glass by low-energy protons [J]. Journal of Spacecraft and Rockets, 2006, 43(3): 514 - 517.
- [5] GULAMOVA R R, GASANOV E M, ALIMOV R. Proton-induced changes of optical properties and defect formation in quartz glasses [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 1997, 127/128: 497 - 502.
- [6] HU J M, WU Y Y, YANG D Z, *et al.* A study on the effects of the proton flux on the irradiated degradation of GaAs/Ge solar cells [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2008, 266(16): 3577 - 3582.
- [7] LULLI G, ALBERTAZZI E, BIANCONI M, *et al.* Determination of He electronic energy loss in crystalline Si by Monte-Carlo simulation of Rutherford backscattering-channeling spectra [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2000, 170(1/2): 1 - 9.
- [8] ZIEGLER J F, BIRSACK J P, LITTMARK U. The stopping and range of ions in solids [M]. New York: Pergamon Press, 1985: 14 - 141.
- [9] 汤家镛, 张祖华. 离子在固体中的阻止本领、射程和沟道效应[M]. 6版. 北京: 原子能出版社, 1988: 32.
- [10] 王同权. 高能质子辐射效应研究 [D]. 长沙: 国防科学技术大学, 2003.
- [11] WILSON W D, HAGGMARK L G, BIRSACK J P. Calculations of nuclear stopping, ranges, and straggling in the low-energy region [J]. Phys Rev B, 1977, 15(5): 2458 - 2468.
- [12] BIRSACK J P, ZIEGLER J F. Refined universal potentials in atomic collisions [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1982, 194(1/2/3): 93 - 100.
- [13] BRAGG W H, KLEEMAN R. On the alpha particles of radium and their loss of range in passing through various atoms and molecules [J]. Philos Mag, 1905(10): 318 - 340.

(编辑 张红)