

文章编号: 1007-4627(2006)02-0185-04

# 碳化硅中惰性气体离子辐照引起缺陷的研究\*

张崇宏

(中国科学院近代物理研究所, 甘肃 兰州 730000)

**摘要:** 综述了有关碳化硅材料中惰性气体离子引起辐照缺陷研究的进展。包括借助多种方法对氦离子辐照的碳化硅中氦泡集团形成的剂量阈值的实验研究, 基于过冷固体假设对氦泡阈值的理论解释, 不同剂量氦泡的两种形态及其机理的研究, 以及重惰性气体离子(Ne, Xe)辐照下缺陷演化的特点。

**关键词:** 碳化硅; 辐照损伤; 缺陷; 氦泡

**中图分类号:** O571 **文献标识码:** A

## 1 引言

碳化硅材料以其优越的高温强度、高导热率、好的化学惰性和长期低活化性能尤其适合在先进核反应堆、核废料处理装置等强辐射或高温环境的应用<sup>[1]</sup>。在这些环境中氦和重惰性气体元素会通过多种途径沉积在材料中。氦在碳化硅中的溶解度很低, 当过量引入时会在基体的各类缺陷处析出, 形成纳米尺寸的氦泡, 造成碳化硅材料断裂韧性的严重损失。如在聚变堆内部碳化硅元件中由于核反应而产生的氦的原子分数可高达  $10^{-3}/a$ , 是金属材料中的 3—5 倍; 由于核废料的衰变会在碳化硅容器中造成重惰性气体元素(Kr, Xe 等)的积累从而引发材料破坏。为澄清氦泡的形成机理, 我们利用透射电镜, 沟道 Rutherford 背散射, 慢正电子束多普勒展宽测量等多种方法系统地探讨了碳化硅材料中氦泡的形成与氦离子注入剂量、注入温度、退火温度的关系, 对比研究了重惰性气体离子辐照情形的缺陷产生特点, 并开展了理论研究。

## 2 碳化硅中氦泡的剂量与温度依赖性研究

实验采用加速器提供的 He, Ne, Xe 离子在 4H

晶型的碳化硅中引入不同水平/浓度的损伤和惰性气体原子, 并做不同温度的退火以研究不同辐照剂量缺陷演化规律。对氦离子辐照情形, 还增加了对辐照温度依赖性的观测。表 1 归纳了氦离子(30 keV 能量)辐照样品的透射电镜分析结果, 即氦离子辐照损伤峰区缺陷随辐照剂量、辐照温度以及退火温度的关系。

实验研究表明碳化硅中氦泡的形成存在一个阈值剂量, 该阈值在 293—500 K 之间随离子注入温度的上升而迅速增大, 即 He 的原子分数从 293 K 附近的  $3.5 \times 10^{-3}$  增加至 500 K 的  $2.7 \times 10^{-2}$ , 而辐射损伤水平从 0.18 dpa(每原子平均的离位数)增加至 1.3 dpa; 但是随着注入温度的进一步上升不再有显著变化。阈值剂量的这种温度依赖关系与辐照缺陷的产生/复合特点一致, 而与氦的迁移行为不同, 表明氦泡的形核需要一定浓度的点缺陷的生成为条件。在高于阈值的剂量, 氦泡的形成呈现两个不同的剂量模式。在略高于阈值的一个窄的剂量范围, 经 1 000 K 附近退火的样品中形成低浓度的氦泡的盘状团簇, 主要位于(0001)面和其它棱柱晶面上。而在更高的注入剂量, 高浓度的微空洞趋于在(0001)面上长程有序的超晶格排列(见图 1 和图 2)。

收稿日期: 2005-11-20; 修改日期: 2006-01-12

\* 基金项目: 中国科学院西部之光基金资助项目; 国家自然科学基金资助项目(10575124)

作者简介: 张崇宏(1967-), 男(回族), 甘肃临夏人, 博士, 研究员, 从事先进反应堆材料的研究;

E-mail: c. h. zhang@impcas. ac. cn

表 1 氦离子辐照的 4H 型碳化硅中辐照损伤区的结构随辐照温度、辐照剂量、退火温度的关系\*

剂量/(He/cm <sup>-2</sup> )(dose 峰值 处 H 原子含量和损伤水平)	辐照温度( $T_{im}$ )		
	RT	500 K	873 K
$5 \times 10^{15}$ (0.35%, 0.18 dpa)	As	—	×
	An	1 173 K 退火后形成 氦泡的盘状集团	×
$2 \times 10^{16}$ (1.5%, 0.7 dpa)	As	—	微弱的应力衬度
	An	—	×
$3.5 \times 10^{16}$ (2.7%, 1.3 dpa)	As	—	—
	An	—	973 K 退火形成约 10 nm 的氦泡 集团, 随后 1 073 K 退火氦泡集 团显著生长
$5 \times 10^{16}$ (3.8%, 1.9 dpa)	As	—	高密度的细小氦泡
	An	—	1 073 K 和 1 173 K 退火都形成 氦泡集团
$2 \times 10^{17}$ (15%, 7.4 dpa)	As	—	高密度的氦泡, 在(0001)面上 有序排列
	An	—	氦泡区域较深边界形成小的氦 泡集团

\* — 未分析, × 未发现缺陷, As 意指仅辐照状态, An 意指辐照 + 退火后状态。

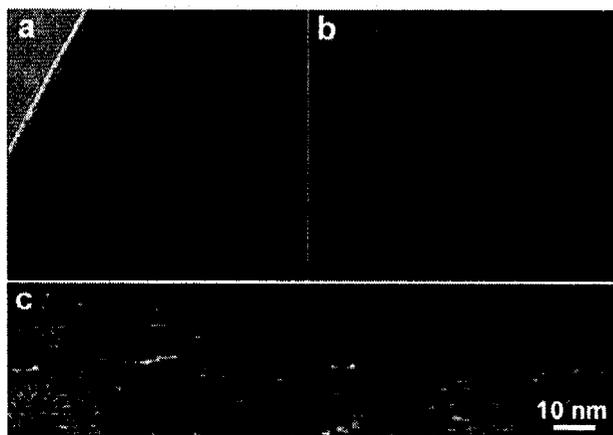


图 1 氦离子辐照至注量  $5 \times 10^{16}$  ion/cm<sup>2</sup> 随后 1 073 K 退火的碳化硅样品损伤峰区形成的氦泡集团  
(a)和(b)为接近(0001)晶向即正面样品中观察得到的欠焦与过焦明场像, (c)为接近(1100)方向即截面样品中观察到的氦泡集团的欠焦明场像。

### 3 碳化硅中氦泡剂量阈值附近的缺陷演化规律的实验和理论研究

我们的透射电镜分析结果表明碳化硅中氦泡形成的剂量阈值远高于金属中氦泡形成阈值, 这个结

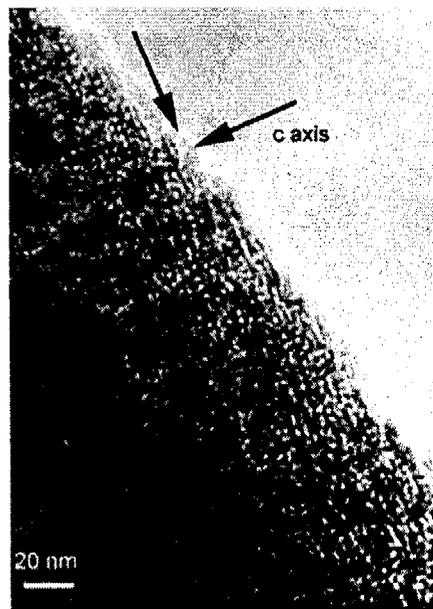


图 2 氦离子辐照至注量  $2 \times 10^{17}$  ion/cm<sup>2</sup> 的碳化硅样品损伤峰区形成的氦泡欠焦明场像  
箭头标注了(0001)即 c 轴和(1100)晶向。

果可以解释碳化硅材料较高的抗辐照能力。我们进而利用沟道 Rutherford 背散射和慢正电子束多普勒技术分析了碳化硅中氦泡形核的剂量阈值附近氦离

子辐照缺陷的演化规律。沟道 Rutherford 背散射技术能够有效分析晶体中间隙型缺陷、晶格畸变(往往伴随氦泡的形成),而正电子湮没分析技术适于对空位型缺陷(包括氦泡、空洞等)的测量。实验用 100 keV 能量的氦离子在 510 K 温度辐照碳化硅样品(4H 晶型)至略低于和高于氦泡形核的剂量阈值的 3 个不同剂量,即  $1 \times 10^{16}$ ,  $1.5 \times 10^{16}$ ,  $3 \times 10^{16}$  ion/cm<sup>2</sup>, 分别对应离位损伤峰值 0.3, 0.45 和 0.9 dpa, 氦原子峰值原子百分浓度 0.65%, 1.0% 和 1.9%。

沟道 Rutherford 背散射分析结果表明,不同剂量辐照样中的缺陷有显著不同的退火行为。在低剂量辐照的样品中,晶格损伤随退火温度单调下降,说明退火过程是由缺陷复合控制的。而在高剂量辐照的样品中,晶格损伤首先随退火温度下降,退火温度高于 973 K 后开始上升,在 1 273 K 温度退火后晶格损伤超过原辐照样中的损伤,说明高剂量情形退火过程在 973 K 以上是由复杂缺陷的产生控制的,依透射电镜分析结果,可知在这个剂量形成了纳米尺寸的氦泡。由退火曲线可知氦泡形成过程的激活能约 3.4 eV。

慢正电子束多普勒测量也证实了氦泡剂量阈值的存在。由正电子在样品中湮没产生  $\gamma$  光子的能量展宽拟合得到的  $S$  参数对退火温度的依赖性在两个剂量情形下显著不同。两种情形在 1 173 K 以前都随退火温度而显著上升,说明这个过程是由空位型缺陷的形成控制的;而 1 200 K 退火后,高剂量情形  $S$  参数仍然上升而低剂量情形  $S$  参数迅速下降,低于原辐照后的样品,说明 1 200 K 退火后低剂量情形空位型缺陷迅速复合,对应退火过程的激活能约 3.8 eV。

沟道 Rutherford 背散射以及慢正电子束多普勒测量共同证实了氦离子辐照的碳化硅中氦泡的形成存在较高的剂量阈值,510 K 辐照时原子分数大约在  $9.34 \times 10^{-3}$ — $18.68 \times 10^{-3}$ , 相应离位损伤水平在 0.45—0.9 dpa 之间。两种测量方法也反映间隙型和空位型缺陷退火行为的不同。低于 1 073 K 温区沟道 RBS 反映间隙型缺陷随温度上升逐渐减少,而  $S$  参数反映空位型缺陷逐渐增加。二者共同说明在退火温度远低于 1 073 K 时, Frenkel 对的复合和空位集团的产生是同时发生的,尽管空位的活动性有限。 $S$  参数在 1 273 K 的转折点可能对应小空位

集团的热分解(相应过程的激活能约 3.8 eV)<sup>[2]</sup>。

我们认为,氦泡在过饱和氦的条件下,即高 He/形核中心比值情形,会在(0001)面发生各向异性的生长,形成不稳定的盘状氦泡;这种结构容易进一步分解,形成氦泡的盘状团簇。基于我们建立的关于缺陷形成和生长的过冷固体假设可以建立氦泡形核的理论模型,定性解释氦泡的剂量阈值以及氦泡深度分布的主要特征。

上述关于碳化硅中氦离子辐照缺陷的部分结果在本领域核心期刊上发表<sup>[3,4]</sup>,在有关的国际研讨会上做了报道。

#### 4 碳化硅重惰性气体离子辐照情形缺陷演化特点

在对氦离子辐照引起缺陷研究的基础上我们也开展了对重惰性气体离子辐照缺陷的研究,旨在通过对比不同质量数的惰性气体离子引起缺陷的行为的差异,加深对碳化硅晶体中惰性气体行为的了解。

本研究采用 4H 型的碳化硅晶体,在兰州重离子加速器国家实验室 HIRFL-SFC 装置的实验终端分别利用 2.3 MeV/u 能量的<sup>20</sup>Ne 和<sup>129</sup>Xe 离子辐照至 3 个辐照损伤水平(1, 4, 13 dpa)。每个样品随后分别在 900 °C, 1 000 °C 进行真空退火并制备了截面电镜试样。微结构的分析主要借助一台装备场发射电子枪的 JEOL-2010F 型透射电镜进行。研究发现碳化硅晶体中惰性气体泡的形成具有高的剂量阈值,剂量阈值大致与离子质量数成反比,气体原子分数对 Ne 离子在  $1.4 \times 10^{-3}$ — $55.8 \times 10^{-3}$  之间,对 Xe 离子大约  $0.39 \times 10^{-3}$ — $1.3 \times 10^{-3}$  之间,分别是氦泡剂量阈值的约 1/5 和 1/30。由于在辐照损伤峰区域单个重惰性气体原子较氦原子能够造成更多离位损伤,这个结论支持了我们关于碳化硅中氦泡形成模型的主要假设,即碳化硅中惰性气体泡的形核需要较大尺寸的空位集团。微结构分析还发现了高于剂量阈值范围的 Ne 和 Xe 离子辐照形成缺陷的显著差别。Ne 离子辐照形成的缺陷以纳米尺寸的气泡为主,与氦离子辐照情形相似;而 Xe 离子辐照时伴随纳米气泡产生还有高浓度的间隙位错环,位于(0001)面上,横向尺寸在 20 nm 左右(见图 3)。我们从惰性气体原子与不同类型空位的

作用机理对这个现象提出了一个解释<sup>[4]</sup>。

能重惰性气体离子的辐照条件。

致谢 感谢兰州重离子加速器国家实验室提供了高

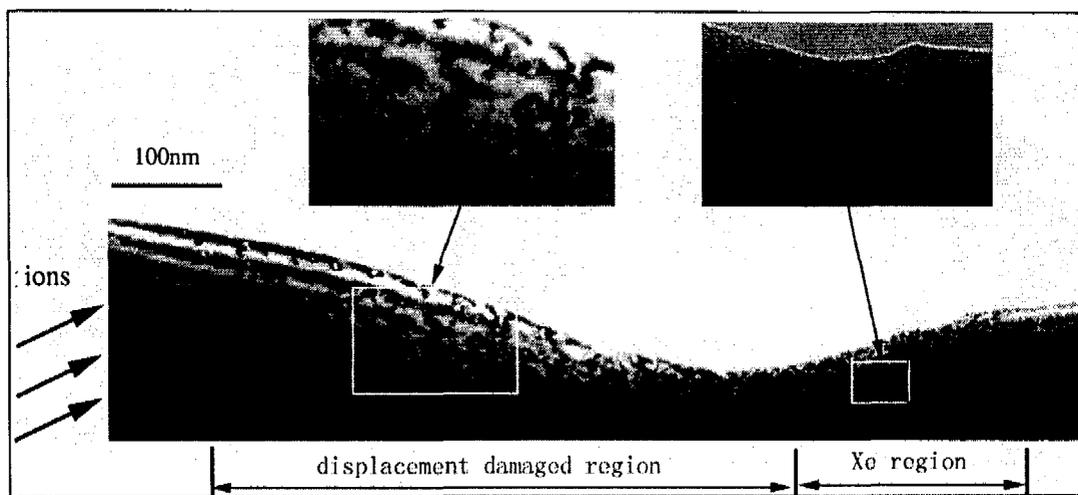


图 3 Xe 离子辐照至注量  $1 \times 10^{16}$  ion/cm<sup>2</sup>, 随后 1 173 K 退火的碳化硅样品损伤峰区形成的位错环和惰性气体泡的截面形貌像

#### 参考文献:

- [1] Weber W J, Wang L M, Yu N, *et al.* Mater Sci Eng, 1998, **A253**: 62.
- [2] Zhang Chonghong, *et al.* In: Proc. 8th Japan-China Symp on Materials for Advanced Energy Systems and Fission & Fusion Engineering, Oct. 4—6, Japan; Sendai, 2004, 183—192.
- [3] Zhang C H, Donnelly S E, *et al.* J Appl Phys, 2003, **94**: 6 017.
- [4] Zhang C H, *et al.* Nucl Instr and Meth, 2004, **B218**: 53.

## Defect Production in Silicon Carbide by Inert-gas-ion Irradiation\*

ZHANG Chong-hong

(Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China)

**Abstract:** This paper gives a review of our recent studies on the defect production in silicon carbide induced by energetic inert-gas-ion irradiation. The work includes the study of the dose threshold for helium bubble formation by combining TEM, RBS-channeling and PAS, the theoretical analysis of the dose threshold for bubble formation based on the Frozen-Matrix assumption, two types of bubble arrangement at different dose regions and the study of damage production behavior in the case of irradiation with heavier inert-gas-ions (Ne, Xe) as a comparison to helium-ion irradiation.

**Key words:** silicon carbide; irradiation damage; defect; helium bubble

\* Foundation item: West Light Talent Foundation of Chinese Academy of Sciences; National Natural Science Foundation of China(10575124)