

## 快重离子引起的辐照效应\*

金运范

(中国科学院近代物理研究所 兰州 730000)

**摘要** 用 PAT、CEMS、SEM 和 TEM 分析观测了 HIRFL 提供的能量为几十 MeV 到几百 MeV 的碳离子在 Ni、马氏体时效不锈钢、HT-9 铁素体钢和 316L 不锈钢中引起的辐照效应, 包括辐照引起的偏析、脱溶、相变和肿胀, 以及辐照肿胀随辐照温度的变化关系, 研究了 510MeV 的碳离子在高纯 Ni 中的损伤分布, 并给出了 95MeV 的 Ar 离子模拟宇宙射线在宇宙飞行器中引起数字半导体器件“软故障”的最近结果.

**关键词** 辐照效应, 损伤分布, 软故障.

### 1 引言

重离子在物质中主要通过两种机制损失它们的能量, 即与靶原子核的屏蔽库伦相互作用(核阻止)和与靶电子的相互作用(电子阻止), 重离子的能量在 100keV/u 以下, 核阻止起主导作用, 而在此能量以上电子能损起主导作用. 这两种相互作用的结果导致物质微观结构的变化, 因而使其物理化学性质, 甚至宏观尺寸发生变化.

快重离子射程长, 在除阻止区外的整个离子路径上电子阻止起主导作用, 电子能损与核能损之比为  $10^3$  量级. 而在近阻止区和阻止区内核阻止起主导作用. 因此快重离子路径上电子阻止起主导作用的区域为研究电子能损效应的有效区域, 而核阻止起主导作用的射程末端为研究弹性碰撞引起效应的最佳区域. 对金属(含合金)材料, 因其激发电子的驰豫时间较短( $<10^{-8}$ s), 除很重的离子外, 通常电子能损不可能产生可见的体辐照效应, 其辐照损伤主要是由重离子与原子核的弹性碰撞所致.

荷能重离子与原子核的弹性碰撞截面, 或在固体材料中的损伤截面, 比快中子的损伤截面大几个量级. 因此用重离子辐照模拟 14MeV 中子在聚变堆第一壁中引起的辐照效应, 可缩短实验周期, 降低实验费用, 使其在聚变堆材料的研究和筛选中占有重要地位.

因快重离子能量高, 在试样中引起的辐照效应相当大, 这就为研究辐照引起材料宏观机械性能和力学性能的变化提供了有利条件, 可为堆材料的研究和选择提供更多的参数.

然而, 材料的重离子辐照并不完全等价于快中子辐照, 首先快中子在聚变堆第一壁(一般为合金)中的损伤是均匀分布的, 而快重离子在金属(合金)中的损伤沿入射方向呈非均匀分布, 另外核反应产物也不相同, 如快中子( $n, \alpha$ )反应可引起严重的氮损伤. 因此, 对重离子辐照与快中子辐照的相关性, 重离子在金属材料中的损伤分布, 以及初始损伤参数对末态损伤影响的研究, 均为引人注目的研究前沿.

快重离子直接模拟宇宙射线对宇宙飞行器中数字半导体器件的“软故障”较之卫星搭载, 有离子种类和能量选择范围大、辐照参数易控制、翻转事件易探测、周期短、花费少等优点, 因而是研究“软故障”机理, 克报和控制“软故障”现象的重要途径.

### 2 实验结果及分析讨论

#### 2.1 快碳离子在 Ni 和马氏体时效不锈钢中的辐照效应

##### 2.1.1 72.5MeV 的碳离子在 Ni 和马氏体时效不锈钢中的辐照效应

用能量为 72.5MeV 的碳离子在室温条件

\* 国家自然科学基金委资助课题

下，辐照工业纯的金属 Ni 和马氏体时效不锈钢(MASS)试样，辐照前试样均进行了常规的抛光、清洗和热处理。辐照剂量为 0.15dpa。用透射电子显微镜(TEM)JSEM-200 和正电子湮没技术(PAT)，观测了碳离子辐照引起 Ni 和 MASS 试样微观结构的变化和产生损伤的形态，图 1 为辐照前后 Ni 试样的显微照片，正电子寿命和多卜勒展宽线性因子 S 的值列在表 1 中。由此看出，碳离子辐照后的 Ni 试样中，产生了许多六角形的空洞，空洞中夹杂着黑斑，Ni 试样中的空洞是由辐照形成的空位在局部温度升高时，扩散聚集而成，而空洞中夹杂的黑斑则是碳和其他杂质原子的脱溶。PAT 的结果也支持上述分析，辐照后 Ni 试样中，正电子寿命  $\tau_1$  从 129ps 增加到 168ps， $\tau_2$  从 389ps 增加到 515ps。 $\tau_1$  的变化，说明辐照形成了空位和位错，而  $\tau_2$  的增加，反映了空洞的形成，S 参数的增加，表明核心电子的减少，即空位和空洞的形成。

但在 MASS 试样中，未见到辐照引起的明显变化，原因很可能是由于其高的位错密度，第二相脱溶和晶粒边界抑制了空洞的形成和生长。

从上述比较分析中显然看出，Ni 对碳离子辐照更敏感，也就是说，MASS 较 Ni 有更好的抗辐照性能。

为了研究辐照温度对生成空洞的大小和

密度的影响，我们用 72.5MeV 的碳离子在不同辐照温度(385°C, 485°C 和 535°C)下，辐照了高纯(99.999%)Ni 试样，辐照剂量为 0.35 dpa，用 TEM 观测了辐照空洞的大小和密度(见表 2)。从表 2 可见，随着辐照温度的增大，形成空洞的尺寸也增大，但空洞的密度随之减小，这种变化和国外的数据也是一致的。

表 1 Ni 和马氏体时效不锈钢的 PAT 实验结果

样品	$\tau_1$ (ps)	$\tau_2$ (ps)	$I_2(\%) S$	
未辐照 Ni	129	389	12	2.97
辐照 Ni	168	515	7	3.39
未辐照不锈钢	155	444	8	3.59
辐照不锈钢	150	432	9	3.48

$\tau$ :寿命 I:强度 S:多卜勒线性参数

表 2 辐照 Ni 中生成空洞的大小密度与辐照温度的关系(0.36dpa)

辐照温度(°C)	平均直径(Å)	平均密度( $\text{cm}^{-3}$ )
385	135	$2.10 \times 10^{15}$
485	579	$3.56 \times 10^{13}$
535	790	$1.60 \times 10^{13}$

## 2.1.2 能量为 42.5MeV/u 的碳离子在高纯 Ni 中的损伤分布

用能量为 42.5MeV/u 的碳离子辐照了 15 层堆积高纯 Ni 试样组，每个试样的厚度为

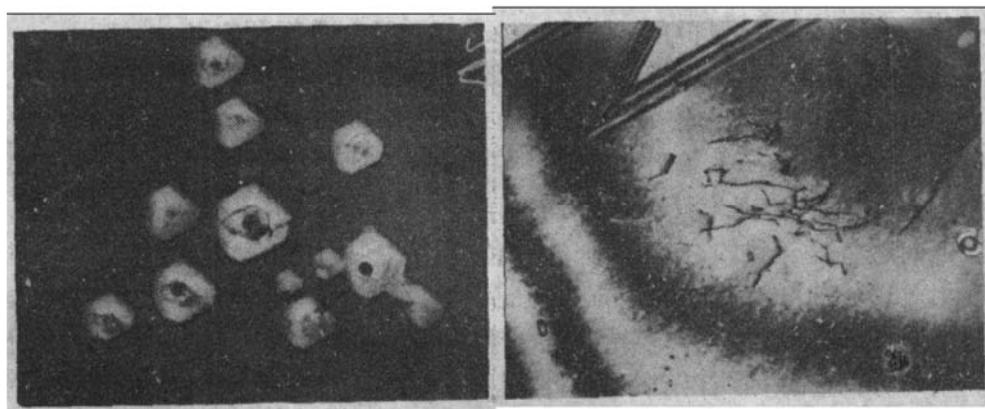


图 1 Ni 的 TEM 照片 (a)辐照(0.15dpa) (b)未辐照

75 $\mu\text{m}$ , 面积为  $20 \times 10\text{mm}^2$ , 辐照总剂量为  $1.3 \times 10^{15}\text{p/cm}^2$ . 辐照之后, 试样放置 4 个月, 以降低辐照激活的短寿命放射性元素造成的本底, 正电子测量系统为快—快符合系统, 整个系统在 Na 窗条件下, 对 Co<sup>60</sup> 的分辨为 240ps, 正电子源为 20 $\mu\text{Ci}$  的<sup>23</sup>NaCl 源.

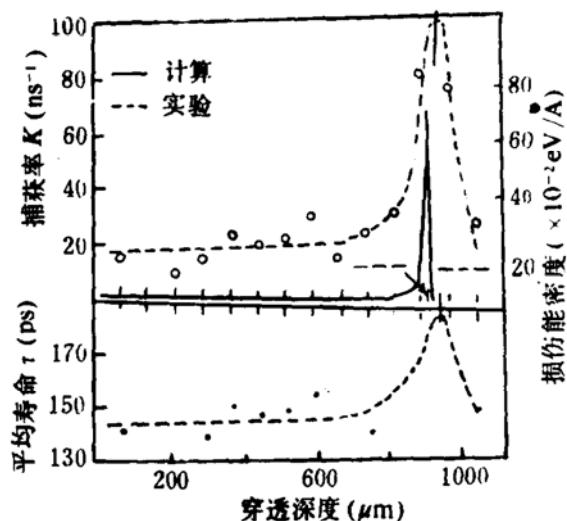


图 2 42.5MeV/u C 粒子注入纯 Ni 样品中的损伤分布  
· 为正电子湮没捕获率  $K$ ; ---为其平均曲线;  
—为理论计算的损伤能沉积曲线;  
· 为正电子湮没平均寿命  $\tau$ , ---为其平均曲线

为了获得碳离子在 Ni 中损伤分布的信息, 同时满足正电子湮没测量对试样厚度的要求, 对 15 片辐照后的试样沿束流入射方向, 依次取 4 片组合成 13 组, 用国际通用的 positronfit—extended 程序对所测得的寿命谱进行了拟合. 这样测得的损伤分布结果与 HEDEP 程序计算的损伤分布的比较如图 2 所示. 从图 2 中看出, 平均捕获率  $K$  和平均寿命  $\tau$  随离子穿透深度的变化, 与理论计算的损伤能沉积曲线的走向趋势是一致的, 但实验曲线的损伤峰宽度相对理论曲线有明显的展宽, 且峰值向离子穿透深处偏离, 这种偏离包括理论计算与实验测量两方面的原因. 首先在理论计算中仅仅考虑了辐照瞬间试样中的损伤分布, 而对缺陷的扩散和热峰效应引起损伤能的再分布未加考虑, 核力修正所使用的锐截止模型

对 20MeV/u 以上的入射能范围也显得有些粗糙. 试验中采用 4 试样组合的方法也必然也会引入复杂的误差因素.

## 2.2 碳离子高温辐照 316L 不锈钢的辐照效应研究

316L 是一种超低碳奥氏体不锈钢, 其成份有: C 0.025%、Mn 1.41%、Si 0.29%、S 0.015%、P 0.017%、Ni 14.14%、Cr 17.22%、Mo 2.25%, 和 Fe 64.63wt%. 316L 具有良好的机械性能和抗辐照性能, 是快增殖堆和聚变第一壁的候选材料之一, 因此国际上有关 316L 辐照效应的研究工作很多, 而且辐照参数继续尽可能的向聚变堆的真实环境靠近. 我国也把 316L 作为聚变堆第一壁的初选材料之一, 重离子模拟 14MeV 中子在这种材料中的辐照损伤, 是聚变堆材料研究的重要组成部分.

聚变堆第一壁处在高通量聚变中子的照射环境之下, 具有很高的温度, 例如中子壁负载在 5MW 的情况下, 其温度在 500°C 左右, 这个温度正处在 316L 发生辐照肿胀的温区 ( $0.3 \sim 0.6T_m$ ,  $T_m$  为材料的熔点, 316L 的  $T_m$  为 1300°C 左右), 因此在 500°C 进行离子辐照更接近聚变堆的真实环境. 为了研究辐照剂量对损伤的影响, 我们进行了两轮实验, 第一轮实验为低剂量的辐照(损伤峰剂量为 2dpa), 第二轮实验为高剂量辐照(损伤峰剂量为 34dpa 和 124dpa).

### 2.2.1 低剂量辐照实验

用 54MeV 碳离子辐照了大小为  $15 \times 15\text{mm}^2$ , 厚度分别为  $9.2\mu\text{m}$ 、 $8.0\mu\text{m}$ 、 $8.2\mu\text{m}$  和  $9.4\mu\text{m}$  (分别称之为  $s_1$ 、 $s_2$ 、 $s_3$  和  $s_4$ ) 的四试样叠层. 辐照时, 离子从  $s_1$  进入, 通过  $s_2$ 、 $s_3$ , 最后停留在  $s_4$  中 (投影射程  $R_p = 29.5\mu\text{m}$ ), 损伤截面最大处(射程的  $28\mu\text{m}$  处)在  $s_4$  中, 此处的剂量为 2dpa. 用透射穆斯堡尔谱和 X 光衍射分析了辐照引起的相变, 用 AlNiCo8 磁钢检验了宏观磁性. 在参考样品  $s_0$  中未发现  $\alpha$ (铁素体)相存在, 也没有宏观亲磁现象, 而后两个试样  $s_3$  和  $s_4$  有明显的宏观亲磁现象, 在穆斯堡尔谱

上拟合出了铁磁性六线峰,X光衍射谱图上出现了( $\alpha$ -Fe)2B衍射线,说明经碳离子辐照产生了 $\gamma$ (fcc $\rightarrow$  $\alpha$ (bcc))相变。穆斯堡尔谱和X光衍射分析数据都表明, $s_4$ 中 $\alpha$ 铁素体的含量比 $s_3$ 中大,这与理论计算的最大损伤截面是在离子路径的 $28\mu\text{m}$ 处相吻合。由于奥氏体钢中的 $\gamma$ - $\alpha$ 相变是内应力驱动的,因此可以断定:54MeV的碳离子低剂量辐照后,在损伤截面最大处附近引起了内应力,因而导致了相变。

## 2.2.2 高剂量辐照实验

试样为固溶+20%冷轧 $9.5 \times 9.5\text{mm}^2$ 的316L方片,其厚度为 $0.25\text{mm}$ ,辐照碳离子的能量为51.4MeV,辐照的损伤峰剂量分别为34dpa和124dpa。TEM观测使用横截面电镜试样,这样可直接观测出沿离子路径的损伤(包括形貌),并尝试用SEM代替TEM,观测辐照肿胀的可能性,即用空洞面积肿胀代替空洞体积肿胀的可行性。

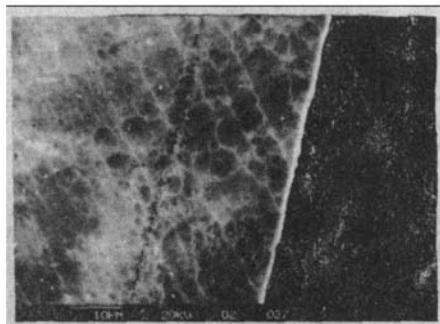


图3 316L横截面试样的SEM照片(124dpa)

观察结果表明:在损伤峰剂量为34dpa的试样中没有空洞形成,而在损伤峰剂量为124dpa的试样中有空洞形成,这一结论表明,在此实验条件下,316L空洞肿胀的潜伏期 $\geq 34\text{dpa}$ 。用SEM也观察到同样的结果(见图3),这给辐照肿胀的观测带来了很多方便,避

免了TEM的制样困难和厚度测不准的问题。

## 2.3 510MeV 碳离子辐照 HT-9 铁素体钢的 CEMS 研究

HT-9是一种铁素体钢,主要成分有:C 0.19%、Cr 11.8%、Ni 0.54%、W 0.6%、P 0.011%、N 0.014%、Mn 0.54%、Si 0.45%、S 0.017%、Nb < 0.01%、Mo 1.02% 和 V 0.32Wt%。HT-9因其良好的抗辐照肿胀性能而作为聚变反应堆第一壁和增殖区结构材料的候选材料之一。近几年来,有关重离子辐照HT-9引起微观结构变化的研究逐渐增多,而较多的研究集中在辐照引起的相变,辐照引起合金元素的偏析和脱溶等方面。

我们用内转换电子的穆斯堡尔谱(CEMS)对510MeV的碳离子辐照5层堆积HT-9试样进行了相分析。辐照剂量为 $1.3 \times 10^{15}\text{ P/cm}^2$ ,试样均为 $15 \times 30\text{mm}^2$ 的矩形薄片,其厚度对于1、2、3、4和5号试样分别为240、235、255、245和 $260\mu\text{m}$ ,5个试样的总厚度为 $1235\mu\text{m}$ ,这样保证了对510MeV碳离子完全阻止。辐照之前,试样均进行了真空固溶处理。辐照时,离子束从1号试样进入,经2、3、4号试样最后完全被阻止在5号试样中。在这种辐照几何下,1、4和5号试样离子束进入面的损伤截面之比为1:2:4,而2、3号试样几乎与1号试样有相同的损伤截面,因此我们仅仅给出1、4、5和参考样0号试样的CEMS结果。

辐照试样和未辐照试样的CEMS的主要差别在于顺磁相成分的增加,而且在位于阻止区的5号试样中最为明显。同时也观察到铁磁相谱线的某些变化。图4是未辐照试样和辐照试样的铁磁相超细磁场的几率分布图。从图中可以看出三个明显的特点:(1)随着损伤截面的增大超精细场的分布逐渐收缩,对0、1、4和5号试样超精细场的分布范围分别为110.6、106.7、101.1和99.3kOe;(2)随着损伤截面的增大,几率最大对应的超精细场的值向超精细场小的方向移动,对于0、1、4和5号试样,几率最大对应的超精细场的值分别为317.6、310.3、304.3和304.1kOe;(3)几率最大峰有

变窄的趋势。超精细磁场值的变化反映了 Fe 原子近邻和次近邻溶质原子的种类和数量的变化。HT-9 铁磁相的超精细场随损伤截面的增加,如此有规律的变化说明存在一种损伤机制,使原子重新排列具有一定规律性,它反映了 HT-9 中的合金元素由于高能重离子辐照而引起的偏析。

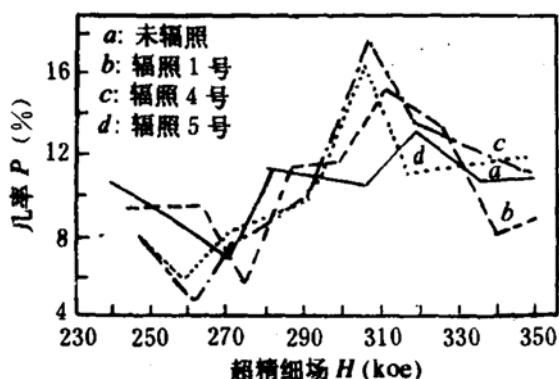


图 4 铁磁相超精细场的几率分布

#### 2.4 宇宙射线在宇航器件中引起损伤的模拟

八十年代中期,日本、法国、德国和英国都相继开展了单粒子效应的研究工作,而最有效

的工作都是在大型加速器上进行的,目前已进入了实用阶段,有些公司生产的芯片都附有单粒子效应的数据。国内单粒子效应的研究,先是用 Cf<sup>252</sup> 裂变碎片源,而后也开始转向加速器。HIRFL 提供的重离子束具有很高的能量,可穿透芯片的保护膜,直接射向其灵敏区,HIRFL 也可提供多种重离子,因此可覆盖很宽的 LET 区。

我们与中科院和航天部有关单位合作,用 HIRFL 提供的 95MeV 和 1GeV 的 Ar 离子模拟了宇航数字半导体器件(SRAM, EEPROM, CPU)中单个事件的干扰的“闩锁”,测得了这几种芯片的单粒翻转截面和闩锁截面的数据(见表 3),为抗单粒子效应提供了基础数据。

表 3 95MeV Ar 离子引起几种芯片的软损伤

测试器件名称		单粒子翻转截面	单粒子闩锁截面
型号	功能	$\sigma_u(\text{cm}^2/\text{bit})$	$\sigma_L(\text{cm}^2/\text{bit})$
80c86	cpu	$8.6 \times 10^{-7}$	
8086	cpu	$3.1 \times 10^{-6}$	
7164	SRAM	$6.3 \times 10^{-8}$	$8.9 \times 10^{-10}$
7164	SRAM		
2164	EPROM		$3.7 \times 10^{-10}$

\* 芯片上带保护膜

## Radiation Effects Induced by Swift Heavy Ions

Jin Yunfan

(Institute of Modern Physics, Academia Sinica, Lanzhou 730000)

**Abstract** The radiation effects were studied by means of PAT, CEMS, SEM and TEM in nickel, martensitic ageing stainless steel, ferrite steel HT-9 and stainless steel 316L induced by carbon ions with energy of tens of MeV to hundreds of MeV delivered by HIRFL. It includes segregate, precipitate, phase change and void swelling, as well as temperature - relativity of the irradiation swelling. The damage distribution was also studied in nickel irradiated by 510MeV C<sup>6+</sup>. And the recent results of Ar ions simulation of the soft errors induced by cosmic ray in semiconductor device of spacecraft were given.

**Key Words** radiation effect, damage distribution, soft errors.