

文章编号: 1007-4627(2006)02-0194-04

SiO₂ 水玻璃微球辐射增强扩散研究*

何小海^{1,2}, 宋建明^{1,2}, 唐永建², 林理彬¹, 李波²

(1 四川大学物理科学与技术学院, 四川 成都 610064;

2 中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900)

摘要: 激光惯性约束聚变使用的玻璃微球经中子辐照后, 产生辐射增强扩散效应, Ar 在玻璃微球中的扩散性能显著改善, 获得了常规加热加压扩散方式无法得到的扩散效果。而带电离子辐照玻璃微球后 Ar 的扩散性能却没有明显改善。研究了中子和其它带电粒子辐射增强扩散效应的差异。

关键词: 辐射增强扩散; 玻璃微球; 中子辐照; 重离子辐照

中图分类号: TL99 **文献标识码:** A

1 引言

在激光惯性约束聚变实验研究工作^[1]中, 需要在玻璃靶丸中掺入诊断气体^[2,3], Ar 是比较重要的诊断气体之一。然而, Ar 原子尺寸较大, 在玻璃材料中的扩散性能很差, 即使将玻璃材料制成的靶丸置于 500 °C, 1.013 × 10⁶ Pa 氩气环境中, Ar 原子也很难扩散到壁厚仅 2.5 μm 的玻璃靶丸之中。

为将 Ar 充入玻璃靶丸中, 人们探索了许多方法, 其中比较常用的是机械打孔方法^[4-6], 在玻璃微球壁上开一个微孔, 充 Ar 后, 利用粘胶剂或激光烧蚀玻璃纤维将小孔封闭。这种方法破坏了对称性, 同时, 壁上微孔在充 Ar 后封堵困难、气体容易泄漏及微球表面有突起存在等缺点。需要寻找新的途径和方法解决此问题。

原子在固体中通常有 4 种扩散^[7,8]方式: 直接交换、间隙扩散、空位扩散、环形扩散等。Ar 原子尺寸较大, 间隙扩散很难发生, 这是其扩散性能较差的原因。空位扩散需要材料中有足够多的空位缺陷, 然而玻璃微球中靠热振动产生的空位型缺陷数量很低, 空位扩散也很难发生。

粒子辐照是一种非常有效的能产生大量空位型缺陷的方法。高能粒子注入到靶材料^[7-10]中, 将与靶材料的组成原子发生碰撞, 在其内部产生大量的

空位和填隙原子, 使材料的物理、化学性质发生改变。辐射增强扩散效应是其中十分重要的物理现象之一。

本研究希望通过粒子辐照玻璃微球, 利用辐射增强扩散效应改善 Ar 在其中的扩散性能。我们选择中子、质子和 Cu 离子辐照玻璃小球, 研究它们产生的辐射增强扩散效应, 寻找提高 Ar 在玻璃中扩散性能的新方法。

2 实验方法

2.1 中子辐照实验

实验在核反应堆上进行, 中子辐照注量率及注量见表 1。玻璃微球放置在密封铝罐中, 环境温度为 30—40 °C, 辐照时间 28 h。中子源的平均能量低, 仅为 0.025 eV, 其中能量超过 keV 的中子才有

表 1 反应堆中子辐照注量率及注量

编号	注量率 /(n · cm ⁻² · s ⁻¹)	注量 /(n · cm ⁻²)	辐照方法
1	1 × 10 ¹⁰	1 × 10 ¹⁵	连续辐照
2	6.6 × 10 ¹²	1 × 10 ¹⁷	连续辐照
3	6.6 × 10 ¹²	1 × 10 ¹⁸	间断辐照

收稿日期: 2005-11-20; 修改日期: 2006-01-12

* 基金项目: 中国工程物理研究院科学技术基金面上资助项目(20030217)

作者简介: 何小海(1967-), 男(汉族), 四川巴县人, 副研, 从事材料辐照改性及加速器开发研究; E-mail: hxhfzzx@sina.com

可能与靶材料中的 O, Si, Na 等主要原子发生弹性碰撞, 使它们离开正常位置, 形成损伤。

2.2 质子辐照实验

质子辐照实验在 2 MeV 静电加速器上进行, 质子辐照能量、束流和注量见表 2。玻璃微球放置在黄铜底座上。束斑面积 1 cm², 束流功率很小。铜靶用水冷却, 可以认为与室温一致。

表 2 质子辐照束流和注量

编号	能量/MeV	束流/ μA	注量 /(p/cm^2)
1	2	0.3—0.4	5×10^{15}
2	2	0.3—0.4	1×10^{16}
3	2	0.5—0.6	3×10^{14}
4	2	~2.5	3×10^{16}
5	2	~2	1×10^{17}
6	1.5	~2	3×10^{14}
7	1.5	~2	1×10^{17}
8	1.5	0.4—0.5	1.6×10^{16}
9	1.5	0.4—0.5	3×10^{15}

2.3 Cu 离子辐照实验

Cu 离子辐照实验在北京串列加速器核物理国家实验室完成, Cu 离子辐照能量、束流和注量见表 3。实验装置与质子辐照基本相同, 只是在玻璃微球上面覆盖了一层 6.9 μm 厚的铝膜, 防止玻璃微球在辐照过程中脱落。

表 3 Cu 离子辐照束流和注量

编号	能量/MeV	束流/nA	注量 /(Cu/cm^2)
1*	100	~2	2.04×10^{13}
2*	100	~1	2.17×10^{12}
3*	100	~2	2.02×10^{12}
4*	100	~2	2.04×10^{13}
5*	100	~10	2.06×10^{13}
6*	100	~8	2.05×10^{14}

3 实验结果

充 Ar 的装置如图 1 所示, 可以在不同的温度

和压力条件下进行充 Ar 实验。用四极质谱仪^[11—13]测量玻璃微球中 Ar 的含量。

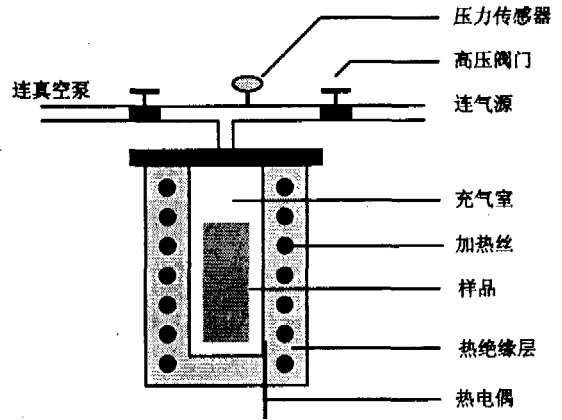


图 1 玻璃微球充气装置示意图

3.1 中子辐照玻璃微球 Ar 扩散性能测试结果

各取 10 个不同中子注量辐照的微球, 放置在充气装置中, Ar 气压力 1.013×10^5 Pa, 加热温度 500 $^{\circ}\text{C}$, 保持时间 10 h。四极质谱仪测试结果见表 4。表中所列出的仅仅是测到 Ar 气的玻璃微球的参数和辐照注量。

表 4 中子辐照玻璃微球 Ar 扩散性能测试结果

编号	直径 / μm	壁厚 / μm	注量 /(n/cm^2)	玻璃球中 Ar 含量 /(1.013×10^5 Pa)
1	220	3.54	1×10^{18}	0.177
2	227	0.62	1×10^{18}	0.004
3	298	1.77	1×10^{18}	0.025
4	270	2.07	1×10^{18}	0.096
5	272	(2)	1×10^{18}	0.058

在注量为 1×10^{17} n/cm^2 及以下时, 玻璃微球中没有检测到 Ar, 当注量达到 1×10^{18} n/cm^2 时, 半数以上的微球中测到了 Ar, 但是, 部分微球没有观察到 Ar 气的存在, 个别微球在充气过程中破碎。

另取 5 个小球, 改变扩散条件, Ar 气压力 1.013×10^5 Pa, 不加热, 在室温下保持 170 h。四极质谱仪测试结果见表 5。

在辐照注量为 1×10^{17} n/cm^2 及以下的玻璃微球中, 没有检测到 Ar 气, 在辐照注量为 1×10^{18} n/cm^2 的玻璃球中, 有 3 个测到了 Ar 气, 有 2 个小球没有 Ar 气存在。

表 5 中子辐照玻璃微球 Ar 扩散性能测试结果

编号	直径 / μm	壁厚 / μm	玻璃球中 Ar 含量 / $(1.013 \times 10^5 \text{ Pa})$
1	216	(2)	0.221
2	230	(2)	1.056
3	220	1.77	0.244

3.2 质子辐照玻璃微球 Ar 扩散性能测试结果

扩散条件及测试结果如下:

- ① $P = 1.013 \times 10^6 \text{ Pa}$, $T = 100 \text{ }^\circ\text{C}$, $t = 12 \text{ h}$, 未检测到 Ar;
- ② $P = 1.013 \times 10^6 \text{ Pa}$, $T = 300 \text{ }^\circ\text{C}$, $t = 20 \text{ h}$, 未检测到 Ar;
- ③ $P = 1.013 \times 10^6 \text{ Pa}$, $T = 500 \text{ }^\circ\text{C}$, $t = 20 \text{ h}$, 未检测到 Ar。

3.3 Cu 离子辐照玻璃微球 Ar 扩散性能测试结果

扩散条件及测试结果如下:

- ① $P = 1.013 \times 10^6 \text{ Pa}$, $T = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ (室温), $t = 90 \text{ h}$, 未测到 Ar;
- ② $P = 1.013 \times 10^6 \text{ Pa}$, $T = 300 \text{ }^\circ\text{C}$, $t = 20 \text{ h}$, 未测到 Ar;
- ③ $P = 1.013 \times 10^6 \text{ Pa}$, $T = 100 \text{ }^\circ\text{C}$, $t = 70 \text{ h}$, 未测到 Ar;
- ④ $P = 1.013 \times 10^6 \text{ Pa}$, $T = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ (室温), $t = 140 \text{ h}$, 然后改变扩散条件: $P = 2.026 \times 10^6 \text{ Pa}$, $T = 500 \text{ }^\circ\text{C}$, $t = 16 \text{ h}$, 未测到 Ar。

4 分析与讨论

玻璃材料经过粒子辐照后, 内部产生了大量的空位缺陷, Ar 原子可以借助空位型缺陷降低迁移的激活能, 其增强扩散系数将远大于正常热扩散系数, 并与空位型缺陷浓度成正比。

Ar 原子在靶物质中的扩散系数可以表达成 $D = D_{\text{th}} + D_{\text{vac}} \times V_{\text{ac}}(r)$ 。D 是总扩散系数, D_{th} 是热扩散系数, 与玻璃的性质、扩散的温度有关。温度一定时, 玻璃中 Ar 的热扩散系数等于常数。 D_{vac} 是与空位型缺陷对应的扩散系数, 与空位型缺陷的浓度成正比。 $V_{\text{ac}}(r)$ 是空位型缺陷分布函数。只要空位型缺陷的浓度足够高, 增强扩散系数将远大于正常热扩散系数, $D_{\text{vac}} \times V_{\text{ac}}(r) \gg D_{\text{th}}$ 。实验结果表明,

水玻璃材料经过中子辐照后, Ar 的扩散性能已经满足要求。

中子^[9,10,14]和离子辐照水玻璃材料时, 产生的辐射增强扩散效应差别很大。中子辐照后, 水玻璃材料的 Ar 扩散性能显著改善, 在注量超过 $1 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$ 时, 短时间内就可以将 Ar 扩散到玻璃微球中。实验使用热中子源, 热中子的平均能量为 0.025 eV , 其中快中子成分仅占百分之几, 也即真正能产生物理损伤的中子注量比总的中子注量低 1—2 个量级。带电离子(质子、Cu 离子)辐照后, 每个入射离子产生的原子位移数(dpa)比中子辐照产生的高出 5—7 个量级。从理论上分析, Ar 在其中的扩散性能应该更好。然而, 实际测量的结果正好相反。

水玻璃的软化点温度约 $750 \text{ }^\circ\text{C}$, 转变点温度 $560 \text{ }^\circ\text{C}$, 熔点 $1500 \text{ }^\circ\text{C}$ 。由于玻璃是绝缘体, 导热性能差, 局部温度和平均温度相对高, 而它的退火温度(约 $300 \text{ }^\circ\text{C}$)较低, 辐照产生的缺陷容易退火。中子辐照产生的主要是点缺陷, 平均温升和局部温升可以忽略。当点缺陷数量达到一定程度, 彼此很靠近时, Ar 的扩散性能将明显提高。

质子和中子的质量基本一样, 与靶原子核碰撞时的能量传递是一样的, 只是中子的碰撞截面远小于质子。相同注量的质子(1.3 MeV)比中子(1 MeV)产生的 dpa 高出两个数量级。但是注量高达 10^{18} p/cm^2 辐照过的玻璃球, Ar 扩散性能却比 dpa 小几个量级的中子辐照过的玻璃微球差很多。造成此差异的原因是质子辐照时能量沉积很集中。质子除了与靶原子核的碰撞截面比中子大以外, 而且与靶原子的外层电子也要发生相互作用而损失能量, 所以质子的线性能量损失比中子的多得多。 $2 \mu\text{A}$ 质子辐照时玻璃微球平均温升 $351 \text{ }^\circ\text{C}$, 300 nA 质子辐照时, 平均温升也有 $165 \text{ }^\circ\text{C}$ 。所以退火效应比较突出, 造成的辐射增强扩散效应没有中子辐照明显。

同样, 对于 Cu 离子辐照来说, 辐照时的平均温升 $100\text{—}200 \text{ }^\circ\text{C}$, 另外, 由于“热钉扎”效应, 局部温度很高。以离子径迹为中心, 径迹周围半径 5 nm 范围内的局部温升超过 $4000 \text{ }^\circ\text{C}$ 。玻璃中损伤缺陷因退火而消除, 总体空位数量降低, 辐射增强效应也不及中子辐照的明显。

5 结论

经过辐照处理的水玻璃, 由于辐射增强扩散效应, Ar 原子在其中的扩散性能显著地提高。实验表明, 当中子辐照注量达到 $1 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$ 时, 可以通过加压或者同时加热加压的方法向水玻璃微球中充入 Ar 气。

从辐射增强扩散效应角度分析, 带电离子与中子辐照有较大的差别。虽然带电离子辐照产生的

dpa 远远大于中子, 但是它们在与水玻璃相互作用过程中, 能量沉积密集, 引起水玻璃局部或整体升温较大, 形成退火效应, 辐射增强扩散效应明显比中子弱。

致谢 对帮助我们完成辐照实验的中物院核物理与化学研究所、北京串列加速器核物理国家实验室和四川大学 720 所的有关人士表示感谢。

参考文献:

- [1] 唐永建. 工程材料, 2003, 1(1): 20.
- [2] Yaakobi B, Steel D, Thorsos E, *et al.* Phys Rev Lett, 1977, 39(24): 1 526.
- [3] Regan S P, Deletrez J A, Jaanimagi P A, *et al.* University of Rochester, 2001, 86: 7.
- [4] Brinker B A, Miller J R. J Vac Sci Technol, 1982, 20(4): 10 791.
- [5] Armstrong S, Flick F F. J Vac Sci Technol, 1982, 20(4): 1 085.
- [6] Nikroo A, Baugh W, Steinman D A. Fusion Science and Technology, 2004, 45: 202.
- [7] 林理彬. 辐射固体物理学导论. 四川: 科学技术出版社, 2004, 110—113.
- [8] 王广厚. 粒子同固体相互作用物理学. 北京: 科学出版社, 1988, 689—719.
- [9] Izgorodin V M, Abramovich S N, Gogolev V G, *et al.* Proc SPIE Int Soc Opt Eng, 2003, 5 228: 738.
- [10] 王承遇, 王波, 陶瑛. 玻璃与搪瓷, 24(4): 26.
- [11] Christian D. Vacuum, 1998, 51(1): 21.
- [12] 刘密新, 罗国安, 张新荣, 童爱军编著. 仪器分析(第2版). 北京: 清华大学出版社, 2002, 299—345.
- [13] 杜廷发编著. 现代仪器分析, 北京: 国防科技大学出版社, 1994, 168—172.
- [14] 丁大钊, 叶春堂, 赵志祥等编著. 中子物理学——原理、方法与应用(上册). 北京: 原子能出版社, 2001, 243—289.

Radiation-enhanced Diffusion in Glass Microsphere*

HE Xiao-hai^{1,2}, SONG Jian-ming^{1,2}, TANG Yong-jian², LIN Li-bin¹, LI Bo²

(1 College of Physical Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610064, China;

2 Laser Fusion Research Center of China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, Sichuan, China)

Abstract: After being radiated by neutron, the glass microspheres, which used in ICF research, have greatly increased the ability of Ar diffusion in it because of the radiation-enhanced diffusion. Such results cannot be achieved by means of thermal diffusion. But after being radiated by charged particles, the ability of Ar diffusion in glass has not increased very much. The differences of the radiation-enhanced diffusion caused by neutron and ions are presented.

Key words: radiation enhanced diffusion; microsphere; neutron irradiation; heavy ion irradiation