

兰州重离子加速器上可开展的应用研究

侯明东

(中国科学院近代物理研究所)

摘要: 重离子应用是一个有意义的研究领域。本文结合兰州重离子加速器目前的实际情况,概要地介绍了近代物理所在该加速器辐照终端上现已开展的课题以及该领域受到注目的研究课题。

兰州重离子加速器经过12年的建造周期,已于1988年12月12日引出50MeV/u的C⁶⁺束。与加速器配套的八个实验终端,也将于今年建成。这些实验设备投入运行之后,使我国第一次具备了开展10—100MeV/u能区重离子研究的物质条件。特别是该加速器的辐照终端将主要服务于重离子的应用研究,它在设计时兼顾了不同实验对辐照条件的多种要求,可以进行固体物理、材料科学和生物医学等领域的研究工作。本文将着重介绍近代物理所在辐照终端现已开展的课题以及感兴趣的课题。

一、重离子模拟中子辐照损伤

在未来所有类型的反应堆中,材料的辐

表 1. 聚变反应堆第一壁所处的工作环境

| 参 数 | 数 值 |
|-------------------------------|---|
| 温度(℃) | 300—1000 (稳态) $\Delta T = 50—300$ (热脉冲) |
| 中子照射(n/cm ² -year) | 10 ²¹ —10 ²² (14.1 MeV)*1 10 ²² —10 ²³ (全部的)*1 |
| 损伤速率 (dpa/sec) | 10 ⁻⁶ —10 ⁻¹ |
| 气体产生率(appm/ year)*2 | 75—500 (氢) 30—600 (氦) |
| 压力水平 bars (psi) | 100—1000 (1500—15000) |
| 循环数目 (磁镜除外) (1/year) | b × 10 ³ 到3 × 10 ⁸ |

*1 给定值相应于1MW/m²和10MW/m²的壁负载。

*2 仅对1MW/m²而言, 10MW/m²需乘10。

参 考 文 献

1. CONF-680920, P389
2. Riso Report, No. 249, P1123
3. 王维达、朱连芳,《自然杂志》Vol.3 No.11(1980)P844—847, 利用热释光测定古陶瓷文物年代
4. J. T. Randall et al., Proc. Ray. Soc. Lond. 184(1945)366
5. J. T. Randall et al., Proc. Ray. Soc. Lond. 184(1945)390
6. CONF-740833, P169—191
7. G. F. J. Garlick et al., Proc. Ray. Soc. Lond. 184(1945)408
8. Robert A. Facey, Health Physics. 12(1966)717—720
9. Robert A. Facey, Health Physics. 12(1966)715—717
10. G. F. J. Garlick et al., Proc. Phys. Soc. 60 (1948)574—590
11. CONF-680920, P332
12. Toshiyuki Nakajima, J. Appl. Phys. 48(1977)4880—4885
13. AEC-CONF-680920, P302
14. CONF-740833, P31—59
15. HASL-303, P29

照损伤是一个严重的技术问题。堆结构材料长期在高通量的中子辐照下,将导致其机械性能、热物理性能以及几何尺寸稳定性的恶化倾向。文献^[1]给出了对聚变堆中第一壁所设想的工作环境(见表1)。虽然工作环境与堆型、工作状态以及金属冷却剂的选择有很大的关系,我们仍能从表1中获得一个范围的概念。

为了达到100dpa数量级的照射,利用现有最先进的快反应堆或最强的中子源(美国RTNS-II $3.5 \times 10^{13} \text{ n/s}$)至少也要花几年的时间,但是利用重离子照射,仅就dpa而言,是很容易达到比中子快 10^4 倍的损伤速率。因此自六十年代末期就开始利用重离子束模拟中子的辐照效应^[2],并且很显然,在聚变堆建成之前,重离子模拟将在聚变堆材料辐照损伤的研究中占有重要的位置。但是在损伤模拟过程中,有两个问题应引起特别的注意,这就是PKA(初级敲击原子)能谱和核嬗变问题。

聚变堆中主要是D-T反应所产生的14MeV快中子。与裂变堆相比,这样的快中子所造成损伤的显著特点是碰撞级联效应。裂变堆中子所产生的PKA能量是从0到几百KeV,峰值大约在1—10KeV,对dpa贡献最大的PKA是在100KeV左右。1MeV电子辐照的PKA平均能量仅100eV左右。而对于D-T聚变反应的快中子,几十到几百KeV的PKA是主要的,它们不仅本身能离开原有的晶格位置,而且还有足够的能量继续引起其他一些原子的位移,形成一系列的级联过程。重离子在一次碰撞中,可以把较多的能量交付给PKA,因此亦有长的级联碰撞,从这个意义上讲,重离子辐照比电子和裂变堆中子能更真实地模拟聚变堆中子的损伤。

但是众所周知,在反应堆中快中子不仅产生引起空位和间隙子的位移,而且也产生能生成少量氢和氦的核嬗变。因为14MeV中子具有较大的(n, p)和(n, α)反应截面,所以这个问题聚变堆要比裂变堆严重得多。

研究结果表明^[3],氦和氢的存在能决定随后空洞生长的动力学过程,对于缺陷的运动,微观结构的改变、肿胀的形成以及高温脆化具有重要的影响。这意味着在用重离子模拟固有的晶格环境时,必须在金属中注入适量的氦或者氢,为此已发展起来一系列的预注入或双束辐照技术,对氦的效应进行了深入的研究^[4-7]。

在模拟辐照研究的早期阶段,认为dpa是主要的相关参数,但是很快就认识到模拟技术常常给出与中子照射十分不同的结果,并且dpa不一定是一个满意的相关参数^[8,9]。虽然,定量的模拟被认为是困难的^[8],但是重离子模拟仍是一种很好的方法,它不仅大大缩短了达到一个给定损伤水平所要求的时间,而且也增加了辐照参数测量和控制的精度。七十年代末一个新的趋势是利用重离子模拟技术来进行快中子辐射损伤过程的基本机制的研究,以及对具有潜在应用可能的材料做快速的筛选。重离子模拟已经在材料的辐照肿胀方面积累了大量的数据,B. A. Loomis^[10]综合了1970年以来关于钒基合金、316不锈钢、Fe-25Ni-15Cr合金、铁素体钢、铜、镍、Nb-1Zr和钼的肿胀实验结果,将离子辐照与中子辐照做了详细的比较。

我们自七十年代末开始材料辐照损伤的研究,曾在1.5米回旋加速器上用72.5MeV的碳研究了Ni和不锈钢的辐照特性^[11]。目前仍在继续进行这一领域的工作,一方面研究损伤的微观过程,从理论上和实验上确定初生态缺陷的形成截面,另一方面对聚变堆候选材料的宏观辐照特性特别是肿胀提供有用的数据。在这方面,HIRFL是一个有利的工具,它既可以提供具有较大损伤截面的重的离子,又可以提供较高的能量,可以产生几十至几百 μm 厚的损伤层,允许对样品做机械性能或其他宏观特性的试测。这些课题已获得八六三项目和国家自然科学基金的资助。

二、核微孔膜的研制

重离子穿过绝缘体的薄膜时,沿着它们的路径会产生直径仅几十埃的损伤区。经过适当的化学蚀刻,这些损伤区逐渐扩大而形成穿透薄膜的核径迹孔。具有这种孔的膜片称为核微孔膜。

核径迹技术是加工这种具有可预先限定孔径大小和孔的面密度的无规则分布微孔的唯一理想的工具。这一技术具有下列显著的特点:孔径人为可调,通过控制蚀刻时间可以得到从 $0.01\mu\text{m}$ 到 $100\mu\text{m}$ 的任何孔径;同一膜片上的孔径均匀,横截面积的分散仅在2%至20%之间;孔有良好纵向形状,孔长与孔径比可以做到 $10^4:1$;孔的取向平行,孔的长度有良好的一致性;每一个粒子径迹精确地相应一个微孔,因此孔的面密度精确可控,可以从单孔直到 10^{10} 孔/ cm^2 以上;可用于多种绝缘体材料,如晶体、玻璃、聚合物等,并且形成不同的横截面形状;生产效率高适于大规模的商业生产。

以上的特点决定了核微孔膜具有许多优良的特性,因而在生物医学、制药和食品工业、分析化学及环境保护等生产科研领域有广泛的应用。核微膜可以作为悬浮微粒过滤器,它比之多孔泡沫或束合纤维所组成的传统过滤器具有更好的选择性,并能使大于孔径的微粒截留在滤膜表面。国外已用核微孔膜过滤啤酒中的酵母菌,制备超纯水和超纯试剂,过滤空气中的粉尘及烟雾等。核微孔膜还可以作为液体或气体混合物的分离处理膜片,比如 ^{235}U 和 ^{238}U 的分离,氦的分离和纯化,海水的淡化,电镀及光刻处理中废水处理及贵金属的回收等等。核微孔膜也特别适于有关渗透和半渗透的理论研究。单孔膜有更为广泛的应用,在医学中可用于测定红细胞的柔软度,在学、全息术照相和电子显微镜中作为针孔光栏,在真空技术和质谱仪中刻度漏气速率并作为气体喷口,在低温物理中

研究液氦中的超流体流动等等。

核微孔膜的制备需要具有一定能量的重离子,提供这种重离子有三种可能的途径。人工核的自发裂变可以方便地提供大约 1MeV/u 的重离子,相当于在固体中大约 $10\mu\text{m}$ 量级的射程。比如 ^{252}Cf 源,半衰期2.65年,自发裂变占3.1%,裂变率大约 10^9 裂变/ $\text{s}\cdot\text{Cf}$ 。但裂变碎片的质量和能量是一个双峰的宽广的分布,不利于核微孔膜的制备。另一种途径是在核反应堆上利用中子引起 ^{235}U 裂变的碎片,在束流强度和准直方面得到很大改进,有可能获得直到 10^{10} 裂变碎片/ cm^2 的面密度,但原则上与自发裂变源一样,非单一的能量和质量影响着孔的性能。与前二种途径相比,重离子加速器是制备核微孔膜的理想工具,离子的种类和能量可以人为的选择,膜的厚度不再受裂变源固有的限制。

为了制备性能良好的核微孔膜,对于加速器和辐照装置最基本的要求如下:能提供质量单一、能量适宜的重离子;高度平行的束流;大面积内均匀的束流分布;面剂量应能在 10^0 — 10^{12} 离子/ cm^2 之间可调和控制;辐照能兼容从薄膜到厚的晶体的各种样品;照射过的样品应能快速的更换。

世界上许多实验室已用重离子加速器进行核微孔膜的生产^[12,13,14]。我们过去曾在1.5米回旋加速器上利用40MeV的氧束在聚碳酸酯薄膜上制备出直径为 0.6 — $8.0\mu\text{m}$ 的孔。现在计划利用较重的 ^{40}Ar 和 ^{84}Kr 制备直径 $0.1\mu\text{m}$ 的微孔,并试图利用它来滤除培养液中个体小于细菌的支原体。同时将对核径迹形成的机制、蚀刻过程、微孔的特性开展研究,并且进一步探索核孔膜其他可能的应用。

最后还要说明的是,核微孔膜只是核径迹技术的一个很小的部分。核径迹技术在加工表面积构如增加粘着性和制备超绝表面,在复型技术如离子场发射、微复合材料和微电子器件,在光学如制备散射片和抗反射表面等方面有多种可能的应用^[15]。核径迹技术

做为微加工手段已经得到了飞速的发展,它既可以利用较多离子无规重迭的体积效应,也可借助微束用单个离子在预定的位置上加工,这表明核径迹技术已从微观结构中个体的无规分布过渡到计算机可控制的确定模式。因此这是一个有工业应用前景的值得开拓的一个领域。

三、生物医学方面的应用

重离子是最近十几年才被引到生物医学的领域中,对于重离子的生物效应和作用机制还所知甚少,重离子的放射物理学和放射生物学的基本研究正在开始和继续。在西德GSI的重离子加速器UNILAC第一个放射生物学的实验是与第一个核物理实验同时开始的,并且以后放射生物医学方面实验的数目和所用的束流时间逐年增加。在美国、西德、日本、法国、苏联,世界上几乎所有的大加速器都有生物医学的研究。

重离子属于高LET射线,有与x-和 γ -射线完全不同的物理特性和生物特性。重离子在生物体内有高的电离密度,且在径迹的末端形成一个明显的布喇格峰。从放射生物学的角度看,重离子的特点是:(1)生物效应大(大的RBE值), (2)对缺氧细胞同样敏感(低的氧增比OER值), (3)对细胞周期的敏感性小, (4)细胞放射损伤的修复少, (5)对肿瘤细胞比正常细胞有更大的杀伤力(治疗增益因子大)。这些特点将使重离子在生物医学领域中开辟出一个新的分支,并导致新的发展。

引人注目的是美国Lawrence Berkeley实验室在重离子治疗肿瘤方面所取得的成功。他们在放射治疗中1975年开始使用 α 离子,1977年使用C离子,1978年使用No离子,1982年使用Si离子,直到现在已有一千多名患者接受了治疗。结果表明^[16]用重离子治疗可以允许高20—30%的肿瘤剂量,有效地增加了局部控制的机会。对于靠近重要器官

的脑、食管、胆管、胰腺、胃、肾、颈等部位的肿瘤收到了良好的临床效果。日本在千页(Chiba)National Institute of Radiological Sciences近年也将建成一个重离子同步加速器用于医学治疗^[17]。西德GSI的重离子同步加速器SIS也期望至少有一部分束流时间用于放射生物实验和重离子治疗^[18]。

放射治疗需要有能提供二、三十厘米射程的大型重离子加速器,由于这个条件的限制,目前世界上大多数实验室都是细胞级的水平上进行研究。研究的内容在物理方面主要是重离子与原子和分子的相互作用,重离子的剂量分布等,在细胞生物学方面主要是DNA的单链和双链断裂,细胞的失活和修复,染色体畸变和遗传效应,也有部分工作研究重离子辐射对生物机体代谢过程的影响。生物医学研究所用的辐照装置,有一系列特殊的要求,作为例子可以参见I. Kaneko等人^[19]给出的介绍。

国内在这个领域的工作基本是空白,我们与兰州大学生物系合作拟利用HIRFL的重离子照射植物种子,研究细胞变异与剂量的关系,基因突变在植物生长中形态学上的表现以及多代子体的遗传学影响。这一研究已获得国家自然科学基金的资助。

四、固体物理中新的核探针技术

近几年PAC(γ -射线扰动角关联)和MB(穆斯堡尔效应)二个核方法广泛的应用于金属中晶格缺陷的研究。一个探针原子通过超精细相互作用感知它所处环境的信息(电场和磁场),并通过 γ -射线将所获得的信息传递出来,但是如何把探针原子掺杂到所研究的固体中,而不带来任何附加的影响,一直是一个难题。

一般情况下探针核都是由反应堆或加速器先生产出它们的母核,然后在特定的时间内($T_{1/2}$)通过核衰变而变成探针核。如果这些母核的寿命足够长(如几天),就可以通过化

学过程(熔融,扩散)把它们掺杂到固体中去。但是有一些核寿命很短,不允许在制备和测量之间插入一个化学过程,其次也常常受溶解度的限制,另外在化学处理过程不可避免的引起高纯金属纯度的降低。另一种掺杂的办法是通常的低能离子注入(几百KeV),缺点是探针核仅沉积在表面附近,在高温退火时很可能逸出样品,而这个退火又是为消除注入过程所引入的损伤不可缺少的。

西德汉·梅特纳核子研究所(HMI)近年来发展了一项利用重离子引起核反应的高能注入技术^[20,21],成功地解决了上述问题,是一个具有普遍意义方法。

来自重离子加速器的高能离子打在一个确定元素的靶上,通过已知的核反应产生出所期望的探针原子。这些探针原子从入射炮弹获得很大的反冲能量,可以使它们飞出靶子而注入到所研究的固体中,注入深度可以到1—30 μm 。

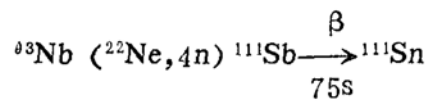
这个方法中探针原子的制备和注入同时进行,使得有可能使用那些半寿命只有几分钟的探针核。如果放弃母体活性而直接制备探针核,那么测量必须在加速器上“在线”进行。探针核可以直接研究它自身注入时所造成的损伤。但是如果研究无缺陷的固体的特性,排除反冲注入时所造成的缺陷,探针的制备和测量就应该分开,在加速器上不是直接制备探针核而是制备探针核的母体,并且它的寿命允许在注入固体之后,进行一定时间的退火,这样就得到了一个在完整晶格中的探针,用以研究没有干扰的特性。“在线”技术和引入母体活性技术,有他们各自的优点和缺点,必须根据不同的目的而加以选择。

除了上述而外,重离子核反应的高能注入技术还具有如下的特点:(1)重离子所产生的探针在固体内只有很低的浓度(<0.1at ppm),它保持了材料原始的高的纯度,因此PAC谱中反映真实的缺陷。初级束流或者穿过靶子或者被阻止在远离探针核的地方,不会起掺杂作用。(2)注入深度大,可以允

许在超高真空中做高温的完全退火,而探针核只有适量的损失。(3)选择靶子和入射炮弹可以制备各种探针核,也可以把它们反冲到任何固体材料中去。

这一技术可以用于研究原子线度内的电场和磁场,研究Frenkel对产生的微观机制,研究高纯度灵敏的bcc金属中的点缺陷以及用MB研究原子跳跃和扩散过程^[22]。作为例子下面介绍核反应高能注入与中微子反冲相结合研究金属中的点缺陷^[23]。

用来自加速器的90MeV的²²Ne束轰击2 μm 厚的Nb箔,发生如下的核反应



核反应给予¹¹¹Sb核直到18MeV的反冲能量,使它们离开Nb箔而注入到研究的材料中。¹¹¹Sb以75s的半衰期 β 衰变到¹¹¹Sn,然后¹¹¹Sn以二种不同的方式衰变。2/3的¹¹¹Sn原子以35分的半衰期通过电子俘获衰变到¹¹¹In,成为一个PAC探针。在这个过程中发射出一个2.5MeV的中微子,导致¹¹¹In原子一个 $E_R=29\text{eV}$ 的单能的反冲。另外1/3的¹¹¹Sn原子由更复杂的过程而衰变,导致一个反冲能量最大为17eV的分布, $E_R=29\text{eV}$ 的反冲能量刚好是在很多金属产生单一Frenkel对的阈能以上,因而仅能形成简单的空位和间隙子。

因为¹¹¹Sn的半衰期35分钟是很短的,所以这个实验必须以“准在线”的方式进行。另一方面,3分钟的寿命已足够进行退火,以使在中微子反冲过程被观测之前消除注入过程伴有的全部损伤,确保在没有其他缺陷的环境中研究Frenkel对的产生过程。

除了以上几个方面之外,重离子在半导体、超导、非晶态等研究领域也有许多甚至很重要的应用,在此不一一列举。结论已经很显然,重离子的应用研究是一个广阔而有意义的领域。为了更好的发挥HIRFL的作用,热烈的期望国内的同行在HIRFL上实施他们

自己的研究计划。

参考文献

1. F. L. Wook et al., Reviews of Modern Physics Vol.47 Supplement No.3 (1975)SI
2. R. S. Nelson, D. J. Mazey and J. A. Hudson, J. Nucl. Mater.37(1970)1
3. H. Wiedersich et al., J. Nucl. Mater. 51(1974)287
4. M. B. Lewis. et al., Nucl. Instr. and Methods 167(1979)233
5. F. V. Nolfi et al., Fifth Conf. on the Application of Small Accelerators, Denton, Texas(1978)1257
6. H. E. Kissinger, et al., PNL-2495 (1978)
7. J. N. McGruer et al., Experimental Methods for Charged Particle Irradiations, ERDA CONF-750947 (Gatlinburg, Tennessee, September 30, 1975)
8. Proc. Workshop, Neutron and Charged Particle Damage, CONF-760673(1976)
9. T. Muroga et al., J. Nucl. Mater. 103 and 104(1981)1385
10. B. A. Loomis, J. Nucl. Mater. Vol. 141-143(1986)690
11. 陈克勒, 程洁, 金运范, 侯明东, 李长林, 罗保平, 姚玉英, 吴美珍, 童志琛, 侯耀永, 李理, 曹川, 核技术 第6期 (1983) 25
12. G. Tress et al., Nuclear Tracks Vol. 6(1982)87
13. Flerov G. N. and Barachenkov V. S, Ouspiki. Phys. Naouk Vol. 114 (1974)351
14. C. Bieth et al., GANIL A88-04
15. B. E. Fischer and R. Spohr, Rev. of Mod. Phys. Vol.55 No4(1983)907
16. R. Joseph, M. D. Castre, Third Workshop on Heavy Charged Particles in Biology and Medicine, GSI, (1987)I-5
17. Hiroshi Tsunemoto and Kiyomitsu Kawachi, Third Workshop on Heavy Charged Particles in Biology and Medicine, GSI, (1987)K5
18. G. Gademann, et al., Third Workshop on Heavy Charged Particles in Biology and Medicine, GSI, (1987)K8
19. I. Kaneko, et al., Third Workshop on Heavy Charged Particles in Biology and Medicine, GSI(1987)D12
20. R. Sielemann et al., Phys. Rev., B25(1982)5555
21. R. Sielemann et al., Phys.Lett., 117A(1986)87
22. R. Sielemann, Materials Science Forum Vol. 15-18(1987)25
23. H. Metzner et al., Phys. Rev.Lett. 53(1984)290