

文章编号: 1007-4627(2009)04-0338-05

高压条件下高能重离子辐照材料研究进展*

翟鹏飞^{1,2}, 刘 杰¹, 孙友梅¹, 侯明东¹, 段敬来¹

(1 中国科学院近代物理研究所, 甘肃 兰州 730000;

2 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘 要: 高能重离子辐照处于高压条件下材料的研究, 是随着高能重离子加速器技术的快速发展而出现的一个新的研究领域, 研究结果涉及材料学、地质学、地质年代学、核废料处理学等学科。简要介绍最近几年国内外在高能重离子辐照高压条件下材料研究领域的研究现状及已取得的结果, 并对未来在兰州重离子加速器冷却储存环(HIRFL-CSR)上开展相关研究工作的前景作了展望。

关键词: 高能重离子; 高压; 相变; 金刚石压腔

中图分类号: O571.33 **文献标识码:** A

1 引言

近 30 年来, 人们在高能离子(几十 MeV—几十 GeV)辐照处于真空或大气环境下(常规条件)的材料研究中做了大量工作。在实验方面已经研究了从 C 到 U 的各种高能离子在绝缘体、半导体、导体、超导体、非晶合金、离子晶体、聚合物材料和团簇材料中的强电子激发效应, 获得了大批非常有价值的实验结果^[1-10], 发现了不少是新现象和新效应, 提高了对于强电子激发效应的认识。在理论方面, 通过对大量实验数据分析总结, 人们提出了各种关于离子径迹形成的理论模型, 其中讨论及应用广泛的有库仑爆炸模型^[11]和热峰模型^[12-14], 但到目前为止离子径迹形成机制还不完全清楚, 对相关的物理过程仍存在许多争议。

近年来, 高能重离子辐照高压条件下材料的研究工作成为一个新的研究方向, 研究结果涉及材料学、地质学、地质年代学、核废料处理等学科。地质年代学中通过测定锆石和磷灰石等的裂变径迹的长度及径迹密度来推断地质年代和地质热力史, 即裂变径迹记录年代法^[15-17]。裂变径迹的长度分布和密度是裂变径迹法中的重要参数, 研究表明这两个参数都与温度有着密切的关系, 因此, 目前建立

的各种裂变径迹退火模型均认为裂变径迹退火只与温度和时间有关, 而与压力等因素无关。但是 Wendt 等人指出压力对于径迹退火有较大影响, 忽略压力的影响会导致应用裂变径迹法时出现大的系统误差^[18-20]; 而 Kohn 等人则认为 Wendt 夸大了压力在径迹退火中的作用^[21]。可见, 压力是否影响裂变径迹的形成及退火仍然是一个有争议的问题。在核废料处理方面, 人们正在研究用锆石和磷灰石等矿物对核废料的固化深埋处理技术, 因此这些矿物在经受长时期的放射性核废料的各种辐射后, 其结构稳定性的变化一直是人们关注的焦点^[22-24]。我们认为, 通过对高能重离子辐照处于高压条件下材料的研究, 不仅能够获得离子径迹形成随压力、入射离子电子能损变化关系等未知数据, 进一步提高对电子激发转变为原子位移机理的认识, 还可能得到材料在高压和离子辐照两个因素共同作用下形成的新相态(对于地质学有重要意义), 而且结合金刚石压腔的高温 and 高压技术能够很好地模拟锆石和磷灰石等矿物处于地质条件下的裂变径迹形成及退火的真实情况, 从而为解决上面提到的裂变径迹记录年代法中的争议问题提供基础实验数据。另外, 高能重离子辐照高压条件下的材料研究对于核废料

* 收稿日期: 2009-02-18; 修改日期: 2009-03-09

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10775161, 10775162, 10805062, 10975164); 中国科学院西部之光人才培养计划联合学者资助项目(O850130XL0)

作者简介: 翟鹏飞(1985-), 男(汉族), 山西运城人, 硕博连读生, 从事重离子与材料相互作用科学研究;

E-mail: zhaipengfei@impcas.ac.cn

处理中涉及到的材料结构稳定性变化的深入认识也有重要意义。

随着重离子加速器技术的快速发展, 各种重离子可以被加速到几百 MeV/u—几个 GeV/u, 保证了重离子穿过金刚石压腔的一块金刚石压砧 (~2 mm) 后仍有足够能量照射实验样品, 从而使得高能重离子辐照处于高压条件下的材料研究工作得以开展。本文简要概括和评价了高能重离子与处于高压下材料相互作用这一新领域的研究现状和最近的研究成果, 并就未来在兰州重离子加速器冷却储存环 (HIRFL-CSR) 上开展相关研究工作的前景作了展望。

2 研究现状

金刚石压腔技术已成为进行极端压力条件下物质结构性质和相变等方面研究的重要方法^[25]。金刚石压腔主要由金刚石压砧、金属垫片、支撑加压部分及外部机械装置组成(见图 1), 金属垫片中间的微孔即样品室(微孔大小为 200—300 μm), 样品室

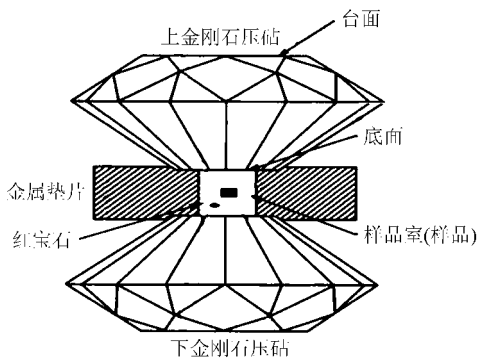


图 1 金刚石压腔的主要组成部分示意图^[25]

装有样品、红宝石及传压介质(未标出), 目前的最高压力可达到 550 GPa。其压力大小常用红宝石荧光定标法监测。另外, 金刚石压腔配合加热装置可使样品室温度达到几千 K。目前, 所有的高压条件下高能重离子辐照材料的实验都是将材料放置于金属垫片上直径 200—300 μm 的孔中, 利用金刚石压腔来产生几十 GPa 的静水高压。

2.1 50 GeV U 离子穿过金刚石的能量沉积研究

由于高能重离子辐照金刚石的电子能损及射程等实验数据很缺乏, Lang 等人在进行高压下高能重离子辐照研究之前做了一项准备实验, 即用 50

GeV U 离子辐照天然金刚石(厚度 2.27 mm)^[26, 27], 研究其剩余能量和在聚碳酸酯(PC)薄膜中的射程。

如图 2 所示, U 离子经过 30 μm 的钛“三明治”探测器、100 μm 的铝窗、45 cm 的空气层及 10 μm 的校正膜后照射到厚度为 2.27 mm 的金刚石上, 穿过金刚石的离子在经过 10 mm 的不锈钢光阑后

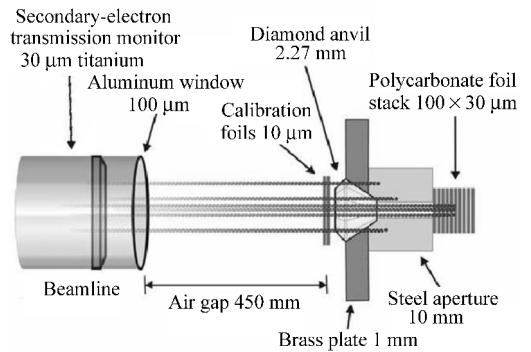


图 2 实验装置示意图^[26, 27]

将剩余的能量完全沉积在 PC 薄膜(PC 膜)里。通过观测辐照并蚀刻过的 PC 膜, 确定了 U 离子在 PC 膜中的射程, 从而利用 SRIM 程序算出在 PC 膜中沉积的能量, 最终确定 U 离子在金刚石中损失的能量为 (35.2 ± 1.9) GeV。利用 SRIM00^[28]、SRIM03^[29] 及 ATIMA^[30] 等程序模拟计算的结果在误差范围内均与此实验结果相符合^[26, 27]。这表明, U 离子穿过金刚石过程中沉积了大量的能量 (~35.2 GeV), 另外, 可以使用已有的程序计算高能重离子在金刚石中的能量损失及在靶材料中的射程。因此, 在高压条件下高能重离子辐照材料的实验中只要精确知道实验中离子所穿过路径上各部分材料的厚度, 便可以根据计算结果合理地使用降能片, 得到实验需要的电子能损值。

2.2 高能重离子辐照高压下的石墨及锆石

德国海德堡大学的 Glasmacher 等人首次报道了高能 U 和 Au 离子辐照高压下的锆石(ZrSiO_4)及高定向石墨(HOPG)的实验结果^[31]。研究人员利用金刚石压腔(DAC)对锆石和石墨样品进行加压, 同时用高能 U 或 Au 离子辐照。透射电镜结果显示, 石墨样品加压到 8.4 和 12.1 GPa, 被 U 或 Au 离子辐照时的结果相类似, 都没有观测到任何单离子径迹, 而是观测到了较大范围的非晶区域; 相比之下, 没有加压及加压至 0.5 GPa 的石墨样品被重离子辐

照时则显示出非常明显的离子径迹,但没有观察到石墨/金刚石的相变。在锆石样品中,U 离子辐照加压的锆石的拉曼光谱见图3,可以看出,样品中

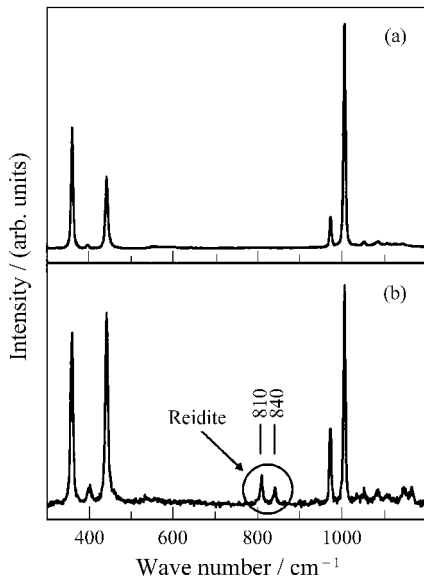


图 3 未辐照锆石的拉曼光谱与处于高压下辐照后锆石的拉曼光谱的对比^[31]

(a)未辐照锆石的拉曼光谱,(b)U 离子(剂量 2×10^9 ions/cm²)辐照处于 14.2 GPa 压力下锆石的拉曼光谱。

出现了高压相 Reidite;在透射电镜中观测到了锆石样品包含随机取向的纳米尺度的 Reidite 晶粒。需要强调的是,离子辐照发生锆石到 Reidite 转变时的压力仅为 14.2 GPa,而如果没有离子辐照,这样的相变一般都要发生在 23 GPa 以上的压力环境下^[32, 33],仅有离子辐照而不施加压力亦不会有此相变^[31]。作者提出一种发生相变的解释,即由压力波传播引起的。因此,可以认为相变的发生是高压和高能重离子辐照共同作用的结果。

2.3 预辐照对高压下锆石相态稳定性的影响

美国密歇根大学的研究人员对锆石样品进行重离子预辐照,研究预辐照对高压下锆石相态稳定性的影响^[34]。图 4(a)和(b)给出了未经预辐照的锆石加压前及加压到 37.0 GPa 后的拉曼光谱,可见加压后出现了明显的 Reidite 相特征峰。结合 XRD 分析表明:样品几乎完全相变为 Reidite 相^[34]。图 4(c)和(d)分别为预辐照(Xe, 1.47 GeV, 5×10^{12} ions/cm²)的锆石加压前及加压到 36.2 GPa 后的拉曼光谱;加压后仅出现几个微弱的 Reidite 相特征峰。结合 XRD 分析表明:样品仅有不到 5%相变为

Reidite 相^[34]。

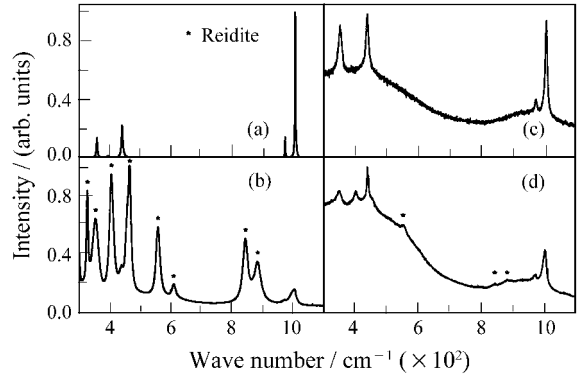


图 4 未经预辐照的锆石与预辐照的锆石各自加压前后的拉曼光谱对比^[34]

作者认为大剂量($\sim 5 \times 10^{12}$ ions/cm²)的预辐照导致 90%锆石样品非晶化,仅仅残留了极少纳米量级的锆石晶体。由于纳米颗粒的特殊性质,使得本身就有更高相态稳定性。另外,由于高压下纳米晶体内的缺陷退火速度加快,使得纳米锆石晶体缺乏锆石/Reidite 相变必需的成核中心,所以预辐照样品所产生的上述两种因素改变了其在接下来的高压条件下的相变关系,即预辐照增加了高压条件下的相态稳定性。

2.4 高能重离子辐照高压下的磷灰石

磷灰石在加压条件下的高能 Kr 离子(2.1 GeV, 5.0×10^{11} ions/cm²)辐照实验中也表现出了一些新现象^[35]。实验发现:10.5 GPa 下辐照后的样品峰位变化比常压下辐照时小,即样品在高压下辐照产生的损伤较少。我们认为高压条件使得材料晶体结构更稳定,从而抗辐照能力增强。这一结论还需要利用不同离子、在不同照射剂量和更广泛的压力条件下对其做系统实验验证。另外,并没有发现高压条件下辐照磷灰石引起的相变。

2.5 高能重离子辐照高温和高压下的锆石

虽然已经有了许多关于不同材料高温下高能离子辐照的报道^[36],但是与高温、高压结合下的高能重离子辐照研究相关的信息却甚少。最近,国外报道了首例高能重离子辐照高温、高压下锆石的研究结果^[37]。Lang 等人利用可加热式金刚石压腔模拟地壳以下约 14 km 的物理环境,研究了天然锆石经 700 °C 退火 24 h 后,在 0.75 GPa 和 250 °C 条件下的高能重离子辐照效应。通过透射电子显微镜

(TEM)观测并统计径迹直径大小,得到了钻石中离子径迹大小分布图,并与常规条件下的实验结果进行对比。结果显示,钻石在高温、高压下由高能重离子辐照产生的径迹直径比常规条件下辐照所产生径迹大 ~ 0.2 nm。而且统计学方法检验确认这 0.2 nm的差别是由于高压、高温的条件引起的。作者认为,0.75 GPa的高压及高能重离子辐照都会使得钻石样品结构产生一定的应变,正是这种应变在一定程度上促进了晶体结构的非晶化过程,因此产生了比常规条件下更大的径迹,并且认为这一结果与 Glasmacher 等^[31]的部分研究结果是一致的。

3 研究工作展望

通过以上实验,我们看到了高能重离子辐照高压下材料所展示出的奇特的、在常规条件下的重离子辐照中未曾出现的新现象。可以说,这些研究是对在常规条件离子辐照研究的扩展并形成了新的研究领域,但目前尚处于起步阶段。

HIRFL-CSR的投入运行,为我们今后在这一领域开展研究工作提供了所需实验条件。目前的高压下高能重离子辐照实验中还没有观测到石墨/金刚石相变及磷灰石的可能相变^[31, 35],我们计划建立高压辐照研究平台,在未来的实验中通过加大压力范围、增加离子种类、选择多个照射剂量进行系统的研究,希望观测到新的现象及可能的相变,同时获得离子径迹形成随压力和入射离子电子能损变化关系等未知数据。

另外,目前的金刚石压腔(DAC)样品室仅能装 ~ 200 μm 的试样,如果需要深入研究处于高压下的各种材料高能重离子辐照实验中的物理、化学性质变化,就需要用到大体积试样($\sim \text{mm}$),因此必须使用大体积的压腔,这同时也对重离子能量提出了更高要求。

参考文献(References):

- [1] Jin Yunfan, Yao Cunfeng, Wang Zhiguang, *et al.* Nuclear Techniques, 2006, **28**(9): 667(in Chinese).
(金运范,姚存峰,王志光等.核技术,2006, **28**(9): 667.)
- [2] Wang Zhiguang, Jin Yunfan, Hou Mingdong. Nuclear Physics Review, 2000, **17**(2): 100(in Chinese).
(王志光,金运范,侯明东.原子核物理评论,2000, **17**(2): 100.)
- [3] Zhu Zhiyong, Jin Yunfan, Tang Yuhua. Nuclear Physics Review, 2000, **17**(3): 129(in Chinese).
(朱智勇,金运范,唐玉华.原子核物理评论,2000, **17**(3): 129.)
- [4] Hou Mingdong. Nuclear Physics Review, 2000, **17**(3): 146(in Chinese).
(侯明东.原子核物理评论,2000, **17**(3): 146.)
- [5] Liu Jie, Neumann R, Trautmann C, *et al.* Nuclear Techniques, 2002, **25**(7): 502(in Chinese).
(刘杰, Neumann R, Trautmann C等.核技术,2002, **25**(7): 502.)
- [6] Liu J, Hou M D, Trautmann C, *et al.* Nucl Instr and Meth, 2003, **B212**: 303.
- [7] Trautmann C, Toulemonde M, Schwartz K, *et al.* Nucl Instr and Meth, 2000, **B164—165**: 365.
- [8] Trautmann C, Klaumünzer S, Trinkaus H. Phys Rev Lett, 2000, **85**(17): 3648.
- [9] Ishikawa N, Chimi Y, Iwase A, *et al.* Nucl Instr and Meth, 1998, **B135**: 184.
- [10] Daulton T L, Kirk M A, Lewis R S, *et al.* Nucl Instr and Meth, 2001, **B175—177**: 12.
- [11] Fleischer R L, Price P B, Walker R M. J Appl Phys, 1965, **36**: 3645.
- [12] Chadderton L T, Torrens I M. Fission Damage in Crystal. Methuen, 1969.
- [13] Wang Z G, Dufour Ch, Paumier E, *et al.* J Phys Condens Matter, 1994, **6**: 6733.
- [14] Toulemonde M, Dufour Ch, Wang Z G, *et al.* Nucl Instr and Meth, 1996, **B112**: 26.
- [15] Takahiro T, O'Sullivan P B. Rev Mineral Geochem, 2005, **58**: 19.
- [16] Donelick R A, O'Sullivan P B, Ketcham R A. Rev Mineral Geochem, 2005, **58**: 49.
- [17] Liu Li, Ren Zhanli. Science Journal of Northwest University Online, 2004, **2**(11): 0111(in Chinese).
(刘丽,任战利.西北大学学报(自然科学网络版),2004, **2**(11): 0111.)
- [18] Wendt A S, Vidal O, Chadderton L T. Earth Planet Sci Lett, 2002, **201**: 593.
- [19] Vidal O, Wendt A S, Chadderton L T. Earth Planet Sci Lett, 2003, **215**: 307.
- [20] Wendt A S, Vidal O, Chadderton L T. Radiat Meas, 2003, **36**: 339.
- [21] Kohn B P, Belton D X, Brown R W, *et al.* Earth Planet Sci Lett, 2003, **215**: 299.
- [22] Ewing R C, Lutze W, William J. Weber J Mater Res, 1995, **10**: 243.
- [23] Ewing R C. Proc Natl Acad Sci, 1999, **96**: 3432.

- [24] Lumpkin G R. *ELEMENTS*, 2006, **2**: 365.
- [25] Jayaraman A. *Rev Modern Phys*, 1983, **55**(1): 65.
- [26] Lang M. The Effect of Pressure on Ion Track Formation in Minerals(Doctoral Thesis). Germany: University of Heidelberg, 2004.
- [27] Lang M, Glasmacher U A, Neumann R, *et al.* *Appl Phys*, 2005, **A80**: 691.
- [28] SRIM2000. <http://www.srim.org>.
- [29] SRIM2003. <http://www.srim.org>.
- [30] ATIMA. <http://www-linux.gsi.de/~weick/atima/>.
- [31] Glasmacher U A, Lang M, Keppler H, *et al.* *Phys Rev Lett*, 2006, **96**: 195701.
- [32] Knittle E, Williams Q. *Am Mineral*, 1993, **78**: 245.
- [33] Van Westrenen W, Frank M R, Hanchar J M, *et al.* *Am Mineral*, 2004, **89**: 197.
- [34] Lang M, Zhang Fuxiang, Lian Jie, *et al.* *Earth Planet Sci Lett*, 2008, **269**: 291.
- [35] Liu J, Glasmacher U A, Lang M, *et al.* *Appl Phys*, 2008, **A91**: 17.
- [36] Liu J, Yao H J, Sun Y M, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 2006, **B245**: 126.
- [37] Lang M, Lian Jie, Zhang Fuxiang, *et al.* *Earth Planet Sci Lett*, 2008, **274**: 355.

Recent Progress of Investigation on Materials Irradiated with High Energy Heavy Ions under High Pressure^{*}

ZHAI Peng-fei^{1, 2, 1)}, LIU Jie¹, SUN You-mei¹, HOU Ming-dong¹, DUAN Jing-lai¹
 (1 *Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*;
 2 *Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

Abstract: With development of high energy heavy ion accelerator, it is possible to perform heavy ion irradiation experiments of pressurized materials in diamond anvil cells(DACs). It is a new research field. The results expected from irradiation experiments under high pressure will have impacts on several scientific fields such as materials science, geo-science, geochronology, and nuclear waste storage. In this paper, some of recent works in this field are presented and reviewed. Furthermore, the research plan of materials under high pressure based on HIRFL-CSR is introduced.

Key words: high energy heavy ion; high pressure; phase transition; diamond anvil cell

* **Received date:** 18 Feb. 2009; **Revised date:** 9 Mar. 2009

* **Foundation item:** National Natural Science Foundation of China(10775161, 10775162, 10805062, 10975164); Western Light Talents Training Co-scholar Program of Chinese Academy of Sciences(O850130XL0)

1) E-mail: zhaipengfei@impcas.ac.cn