

Xe 离子束辐照硼硅酸盐玻璃和石英玻璃效应对比研究

彭海波 刘枫飞 张冰焘 张晓阳 孙梦利 杜鑫 王鹏 袁伟 王铁山 王建伟

Comparative studies of irradiation effects in borosilicate glass and fused silica irradiated by energetic Xe ions

Peng Hai-Bo Liu Feng-Fei Zhang Bing-Tao Zhang Xiao-Yang Sun Meng-Li Du Xin Wang Peng Yuan Wei Wang Tie-Shan Wang Jian-Wei

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 67, 038101 (2018) DOI: 10.7498/aps.20172117

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.20172117>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I3>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[Hf-N 体系的晶体结构预测和性质的第一性原理研究](#)

Novel compounds in the hafnium nitride system: first principle study of their crystal structures and mechanical properties

物理学报.2016, 65(11): 118102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.118102>

[Ca²⁺ 掺杂对 CdO 多晶热电性能的影响](#)

High temperature thermoelectric performance of Ca²⁺ doped CdO ceramics

物理学报.2015, 64(21): 218101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.218101>

[杂质对 Nb₂GeC 性质影响的第一性原理研究](#)

Theoretical investigation of the effects of impurity on the properties of Nb₂GeC

物理学报.2015, 64(23): 238101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.238101>

[基于阻抗模型解析的氧化锆固体电解质组织结构演变模型](#)

Microstructure evolution model of zirconia solid electrolyte based on AC impedance model analysis

物理学报.2012, 61(9): 098102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.098102>

Xe离子束辐照硼硅酸盐玻璃和石英玻璃效应对比研究*

彭海波¹⁾ 刘枫飞¹⁾ 张冰焄¹⁾ 张晓阳¹⁾ 孙梦利¹⁾ 杜鑫¹⁾
王鹏²⁾ 袁伟¹⁾ 王铁山¹⁾ 王建伟^{3)†}

1)(兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000)

2)(兰州大学物理科学与技术学院, 兰州 730000)

3)(中国工程物理研究院微系统与太赫兹中心, 成都 610200)

(2017年9月25日收到; 2017年11月10日收到修改稿)

玻璃固化体作为放射性废物地质处置的第一道安全屏障, 它的耐辐照性能研究至关重要. 玻璃固化体主要网络结构硅氧四面体与石英玻璃的硅氧四面体是一致的, 所以这里用石英玻璃代替玻璃固化体作为研究对象. 本文采用Xe离子在相同条件下辐照石英玻璃和硼硅酸盐玻璃. 利用纳米压痕技术和椭圆偏振仪表征了辐照前后样品的硬度、模量以及折射率的变化情况. 结果表明: 硼硅酸盐玻璃和石英玻璃的硬度均随着辐照剂量的增大而减小, 硼硅酸盐玻璃的模量随着辐照剂量的增大而减小; 石英玻璃的模量随着辐照剂量的增大而增大. 模量的变化可能和密度的变化有关, 这点与折射率的结果相符.

关键词: 石英玻璃, 硼硅酸盐玻璃, 辐照效应

PACS: 81.05.Je, 64.70.ph, 61.80.Jh

DOI: 10.7498/aps.67.20172117

1 引言

伴随着中国核电产业的迅速发展, 作为核电技术重要一环的乏燃料处理受到重视. 预计到2020年, 中国核电产业每年将会产生1000吨的乏燃料. 乏燃料经过一系列处理后可回收90%的铀和钚, 但仍然剩下大量具有高放射性的废液. 对高放废液处理一般采用玻璃固化-深地质处置的方式, 即将放射性废物固溶于玻璃之中生成玻璃固化体, 并将其置于500—1000 m的地下处置库中. 玻璃固化体不溶于水, 因而能够将放射性核素与生物圈隔离. 然而玻璃固化体的保存条件十分苛刻, 需要高温、强辐照场条件. 因而, 在长达万年的处置过程中玻璃固化体是否会失效是人们关心的问题. 目前, 玻璃固化体的辐照效应研究已经引起广泛重视.

Weber等^[1,2]研究玻璃固化体的辐照效应, 展示了辐照后玻璃固化体可能出现的宏观效应. 除此之外, 他们采用短寿命同位素掺杂的方式得出了玻璃固化体的硬度随累积剂量变化的规律, 并指出硬度下降可能不是源于玻璃固化体体积的变化^[3]. Peugnet等^[4-7]采用离子辐照、短寿命放射性同位素掺杂、中子辐照含硼玻璃等手段来研究 α 放射性固化体的辐照效应, 研究了不同组分玻璃的辐照效应, 并给出了硬度和模量随着辐照剂量增加呈指数下降的趋势. Ollier等^[8-10]通过拉曼谱手段研究发现 β 辐照条件下, 玻璃微观缺陷数目随着辐照剂量增大而增大, 桥氧结构发生改变会有分子氧的生成. Mohapatra等^[11-13]使用电子顺磁共振、正电子湮没谱和荧光光谱等手段研究了 γ 和电子辐照玻璃固化体, 玻璃微观缺陷数目随着辐照剂量增大而增大, 并且缺陷结构随着温度的升高越来越不稳

* 国家自然科学基金(批准号: 11505085, 11505086)和兰州大学教学研究项目基金(批准号: 201621)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wangjianwei@mtrc.ac.cn

定. Wang 研究小组^[14–20]就玻璃的辐照效应开展了一系列实验研究, 通过研究重离子和电子辐照玻璃, 发现核能损是导致玻璃硬度下降的主要原因, 其次离子辐照玻璃也会导致玻璃桥氧结构发生改变生成分子氧.

目前很多实验验证在辐照条件下玻璃的硬度和模量会下降^[18,21,22], 导致其下降的原因并不清楚. Peng 等^[18]认为核能损起主要贡献, 然而 Peugeot 等^[23,24]通过新的实验指出电子能损也会起作用, 甚至 He 离子辐照对玻璃会有部分的修复作用. 硼硅酸盐玻璃主要的网络结构被认为是硅氧四面体结构组成, 石英玻璃也是由硅氧四面体结构组成. 因此本研究使用石英玻璃代替硼硅酸盐玻璃. 利用重离子辐照石英玻璃, 通过比较辐照后石英玻璃与硼硅酸盐玻璃的硬度与模量变化的异同来研究重离子辐照后硼硅酸盐玻璃硬度和模量下降的机理. 辐照后玻璃的硬度和模量发生了改变, 可能与密度相关, 但是由于辐照层只有 2 μm 无法直接测量其密度, 所以通过折射率间接测量得到密度的变化.

2 实验

2.1 样品准备

实验所用石英玻璃样品为纯净的熔融石英, 其基本结构和 SiO_2 的网络结构相同, 是一种短程有序长程无序的二氧化硅晶体结构, 有别于晶体 SiO_2 , 因此又被称为 SiO_2 玻璃. 样品尺寸为 10 mm $\times$ 10 mm $\times$ 1 mm, 两面抛光. 硼硅酸盐玻璃组分质量百分比分别为 SiO_2 (65.2%), B_2O_3 (18.8%), Na_2O (16.0%), 其中 Na_2O 组分在实际炼制过程中用碳酸钠代替. 玻璃样品是由北京特种玻璃研究院炼制, 其制备流程包含炼制、退火、切割、抛光四个过程. 炼制过程是将样品升温至 1200 $^\circ\text{C}$, 然后搅拌使气泡得以排除, 最后在 1120 $^\circ\text{C}$ 出料. 炼制好的玻璃经过退火、切割、抛光得到尺寸为 10 mm $\times$ 10 mm $\times$ 1 mm 的玻璃样品. 辐照实验采用 Xe 离子多束辐照石英玻璃和硼硅酸盐玻璃. Xe 离子多束辐照在中国科学院近代物理研究所 320 kV 综合实验平台上完成, 为了使损伤分布均匀, 在真空室温的情况下, 分别采用 1.6 MeV, 3.2 MeV 和 5 MeV 三种能量 Xe 离子多束辐照石英玻璃和硼硅酸盐玻璃, 离子束流强度为 0.7 μA , 辐

照区域面积为 1.7 cm $\times$ 1.6 cm. 由于辐照注入离子数目远远低于损伤层靶原子数目, 因此可以忽略辐照产生的掺杂效应. 通过 SRIM 模拟计算, 材料密度参数为 2.2 g/ cm^3 , 离位阈能为 25 eV. 得到了图 1 所示的 Xe 离子多束辐照石英玻璃损伤分布曲线, 表明了 Xe 离子多束辐照在石英玻璃浅表面形成了 2 μm 的均匀辐照层.

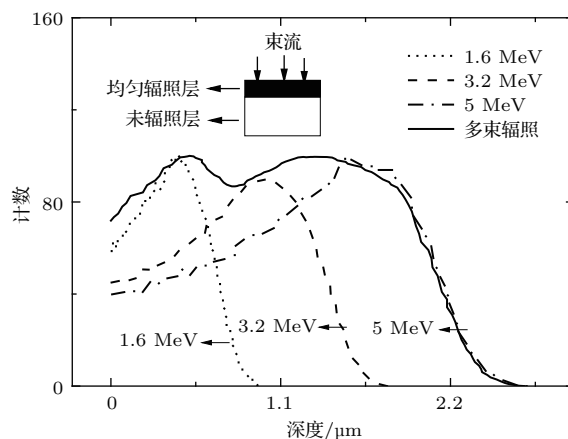


图 1 Xe 离子多束辐照石英玻璃损伤分布曲线

Fig. 1. Fused silica damage distribution curves with irradiation of Xe ions.

表 1 列出了 Xe 离子辐照能量剂量的对比. 剂量的计算公式:

$$D = \frac{V \times \Phi \times M}{n \times R \times \rho \times N_A}, \quad (1)$$

其中 D 代表辐照剂量; V 代表单位离子辐照在靶材料中产生的靶原子离位数, 假定样品为晶格结构, 平均每个离子入射导致 N 个靶原子离开原来的位置, 则离位数为 N , 离位数可以通过 SRIM 计算得到; Φ 代表着辐照注量; M 代表着样品的摩尔质量; n 代表着样品的原子数; R 为粒子在样品中的射程; ρ 是样品的密度; N_A 是阿伏伽德罗常数.

2.2 测试方法

2.2.1 纳米压痕测试方法

辐照样品的硬度和模量是利用苏州纳米研究所的 Nano Indenter G200 型纳米压痕仪测量得到的. 为了减小干扰, 测试在夜间室温环境下采用布氏金刚石压针连续刚度测试模式. 连续刚度测试模式是在加载的过程中利用一个动态的应力振荡信号, 通过特定频率的放大器来平均测量对应的移位振幅和相位^[25]. 纳米压痕仪压入深度为 2 μm , 最大载荷为 500 mN. 硬度根据以下公式计算得到^[26]:

表1 Xe离子辐照能量剂量的对比
Table 1. The comparison of irradiation energies and doses of Xe ions.

E 能量/MeV	1.6	3.2	5	
电荷态	Xe ¹⁷⁺	Xe ¹⁷⁺	Xe ²⁶⁺	D 总剂量/dpa
R 射程/ μm	0.64	1.26	1.97	
Φ 注量/ $\text{ions}\cdot\text{cm}^{-2}$	1.0×10^{11}	1.1×10^{11}	4.3×10^{11}	1.0×10^{-3}
	3.1×10^{11}	3.4×10^{11}	1.3×10^{12}	3.0×10^{-3}
	6.2×10^{11}	6.8×10^{11}	2.6×10^{12}	6.0×10^{-3}
	1.0×10^{12}	1.1×10^{12}	4.3×10^{12}	1.0×10^{-2}
	3.1×10^{12}	3.4×10^{12}	1.3×10^{13}	3.0×10^{-2}
	1.0×10^{13}	1.1×10^{13}	4.3×10^{13}	1.0×10^{-1}
	5.2×10^{13}	5.6×10^{13}	2.2×10^{14}	5.0×10^{-1}
	1.0×10^{14}	1.1×10^{14}	4.3×10^{14}	1.0×10^0

$$H = P_{\max}/A, \quad (2)$$

其中 H 是指材料的硬度; $P_{\max}$ 是最大载荷; A 是压痕投影的面积, 它是接触深度的函数.

模量根据以下公式计算得到:

$$E_r = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \frac{S}{\sqrt{A}},$$

$$\frac{1}{E_r} = \frac{1-v^2}{E} + \frac{1-v_i^2}{E_i}, \quad (3)$$

式中, E_r 是等效弹性模量; S 是刚度; A 是压痕投影的面积, 它是接触深度的函数; E_i , v_i 分别为压头的弹性模量与泊松比; E , v 分别为被测材料的弹性模量与泊松比.

2.2.2 折射率测试方法

利用兰州大学物理学院 SC620 系列自动椭圆偏振光谱仪对辐照前后样品的折射率进行测试. 椭圆偏振光谱仪是一种研究和测定薄膜表面及

固体的光学性质的仪器, 它是利用菲涅耳反射折射定律, 通过分析光在样品上反射的偏振状态的变化, 得到物质的光学性质^[27]. SC620 系列自动椭圆偏振光谱仪采用的光源为氙灯, 波长范围为 250—1100 nm, 波长精度为 1 nm. 实验测试是在常温和 70° 入射角的条件下对样品 300—800 nm 波长处进行三次折射率测试. 样品辐照后分为均匀辐照层和未辐照层, 利用 SC620 软件求出辐照层真实的折射率.

3 实验结果与讨论

3.1 实验结果

图 2 展示了辐照前后硼硅酸盐玻璃的硬度和模量的曲线. 为了定量地描述玻璃样品辐照前后硬度和模量的变化, 选择在 300—800 nm 实际上对应

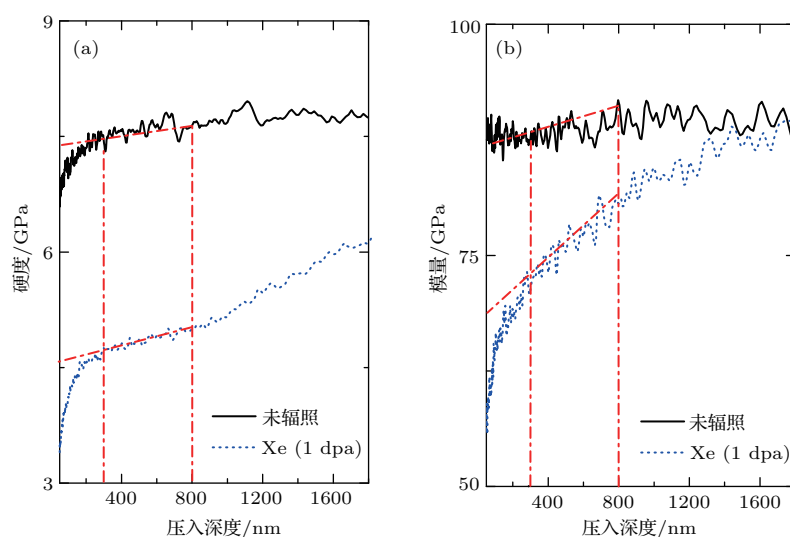


图2 Xe离子辐照前后硼硅酸盐玻璃硬度和模量的变化 (a) 硬度; (b) 模量

Fig. 2. The change curves of hardness and modulus borosilicate glass before and after irradiation of Xe ions: (a) Hardness; (b) modulus.

的是0—1600 nm测试深度区域内的硬度和模量数据, 对其使用外推法^[28]进行数据处理, 从而得到0—1600 nm深度区域的硬度和模量随辐照剂量的变化关系. 辐照后硼硅酸盐玻璃的硬度和模量绝对值是由300—800 nm区域决定的, 根据Peuget等^[5]的报道, 给出测量区域和函数临界区域满足2倍关系, 300—800 nm对应的实际深度是600—1600 nm. 但是所有样品都是从表面压起, 一定会带有表面的信息, 所以300—800 nm实际上对应的是测试区域0—1600 nm深度区域内的硬度和模量数据.

图3展示了Xe离子不同辐照剂量下样品硬度的曲线. 图中横轴表示辐照剂量, 纵轴表示样品的硬度值, ▲和●分别代表石英玻璃和硼硅酸盐玻璃. 随着辐照剂量的增加, 石英玻璃和硼硅酸盐玻璃的硬度均呈整体下降的趋势, 并且最终达到饱和. 未辐照石英玻璃硬度为9.0 GPa; 辐照剂量在0.001—0.1 dpa之间, 硬度开始缓慢减小, 在此之后硬度达到饱和值8.3 GPa; 最大剂量1 dpa处相对于未辐照样品硬度下降了8%. 未辐照硼硅酸盐玻璃硬度为7.5 GPa; 辐照剂量在0.001—0.1 dpa之间, 硬度开始迅速减小, 在此之后硬度达到饱和值4.8 GPa; 最大剂量1 dpa处相对于未辐照样品硬度下降了36%.

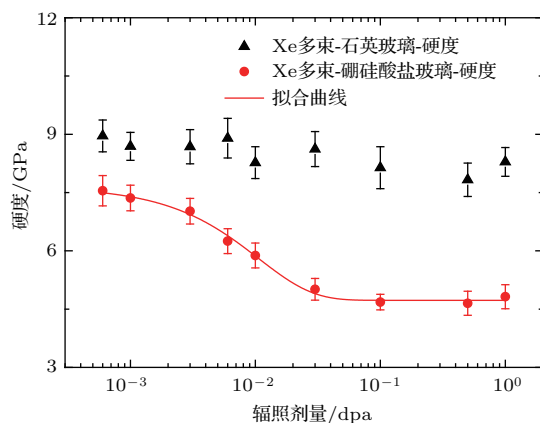


图3 不同辐照剂量下样品的硬度曲线

Fig. 3. The change curves of the hardness of samples before and after irradiation of Xe ions.

Xe离子辐照后硼硅酸盐玻璃样品硬度与辐照剂量拟合满足如下关系:

$$H = H_P - \Delta H \times (1 - e^{-D/t}), \quad (4)$$

式中, H 为辐照后硼硅酸盐玻璃的硬度值; H_P 近似为未辐照硼硅酸盐玻璃硬度值7.6 GPa; ΔH 近似为未辐照硼硅酸盐玻璃硬度与辐照最大剂量硼硅

酸盐玻璃硬度之差2.9 GPa; D 为辐照剂量; t 为衰减常数0.01 dpa, 不同组分的玻璃, t 是不相同的.

图4展示了Xe离子, 不同辐照剂量下样品模量的曲线, 图中横轴表示辐照剂量, 纵轴表示样品的模量值, ▲和●分别代表石英玻璃和硼硅酸盐玻璃. 随着辐照剂量的增加, 硼硅酸盐玻璃的模量呈整体下降的趋势, 但是石英玻璃的模量却呈整体上升的趋势, 并且两者最终均达到饱和. 未辐照硼硅酸盐玻璃模量为86.6 GPa; 辐照剂量在0.001—0.1 dpa之间, 模量开始迅速减小, 在此之后模量达到饱和值70 GPa; 最大剂量1 dpa处相对于未辐照样品模量下降了19%. 未辐照石英玻璃模量为72.2 GPa; 辐照剂量在0.001—0.1 dpa之间, 模量开始缓慢增加, 在此之后模量达到饱和值79.7 GPa; 最大剂量1 dpa处相对于未辐照样品模量上升了10%.

Xe离子辐照后硼硅酸盐玻璃样品模量与辐照剂量拟合满足如下关系:

$$E = E_P - \Delta E \times (1 - e^{-D/t}), \quad (5)$$

式中, E 为辐照后硼硅酸盐玻璃的模量值; E_P 近似为未辐照硼硅酸盐玻璃模量值86.5 GPa; ΔE 近似为未辐照硼硅酸盐玻璃模量与辐照最大剂量硼硅酸盐玻璃模量之差17.2 GPa; D 为辐照剂量; t 为衰减常数0.024 dpa, 不同组分的玻璃, t 是不相同的.

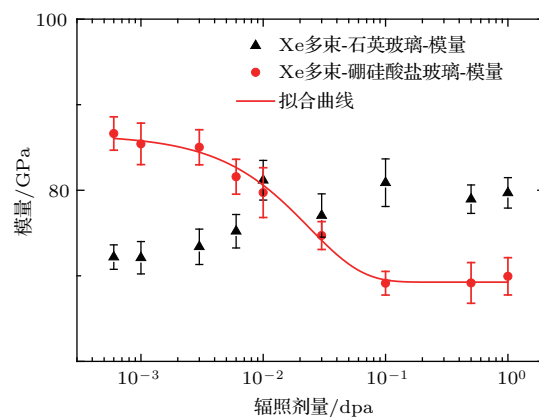


图4 不同辐照剂量下样品的模量曲线

Fig. 4. The change curves of the moduli of samples before and after irradiation of Xe ions.

图5(a)展示了Xe离子不同辐照剂量下石英玻璃样品折射率的曲线, 横轴表示辐照剂量, 纵轴表示石英玻璃的折射率值. 随着辐照剂量的增大, 石英玻璃样品的折射率呈总体上升的趋势, 最大剂量1 dpa处相对于未辐照样品折射率上升了1%.

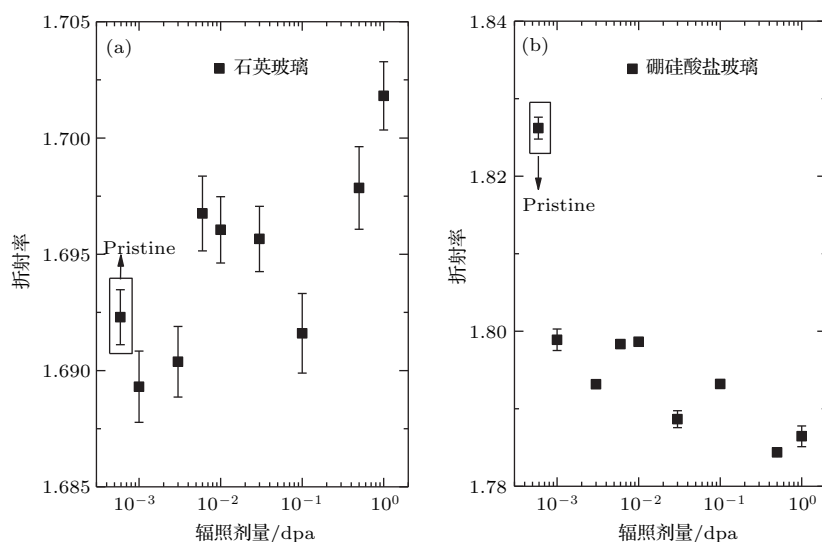


图5 不同辐照剂量下样品的折射率曲线 (a) 石英玻璃; (b) 硼硅酸盐玻璃

Fig. 5. The change curves of the refractive indexes of samples before and after irradiation of Xe ions: (a) Fused silica; (b) borosilicate glass.

图5(b)展示了Xe离子辐照下不同辐照剂量下硼硅酸盐玻璃样品折射率的曲线,横轴表示辐照剂量,纵轴表示硼硅酸盐玻璃的折射率值.随着辐照剂量的增大,硼硅酸盐玻璃样品的折射率呈总体下降的趋势,最大剂量1 dpa处相对于未辐照样品的折射率下降了2%.

3.2 实验误差分析

在测试过程中,无论是硬度、模量、还是折射率,其误差的推导公式一致.误差由标准样的系统误差和测试样统计误差构成.标准样为纯净的石英玻璃,由苏州纳米研究所提供.

$$\delta_{\text{tot}} = \sqrt{\delta_{\text{sta}}^2 + \delta_{\text{sys}}^2}, \quad (6)$$

式中, δ_{tot} 是样品总相对误差, δ_{sta} 由样品测量的统计误差给出, δ_{sys} 是系统误差. 在这里硬度和模量的系统误差用标准样品6次测量的统计误差代替. 最终测得硬度系统误差为3%, 模量系统误差为1.6%. 根据上述误差公式, 石英玻璃样品硬度总相对误差小于6.5%, 模量总相对误差小于3.8%. 硼硅酸盐玻璃样品硬度总相对误差小于7.5%, 模量总相对误差小于4%. 石英玻璃样品折射率系统误差用测试样的五次测量的统计误差代替, 为0.2%, 统计误差为0.2%, 所以石英玻璃样品折射率总相对误差小于0.3%. 硼硅酸盐玻璃样品折射率系统误差用测试样的五次测量的统计误差代替, 为0.2%, 统计误差为0.1%, 所以硼硅酸盐玻璃样品折射率

总相对误差小于0.3%.

3.3 实验结果讨论

采用Xe离子多束辐照石英玻璃和硼硅酸盐玻璃, 通过对比实验结果有以下三点显著不同: 首先是辐照后的石英玻璃和硼硅酸盐玻璃硬度下降的百分比有很大的差异, 石英玻璃样品硬度下降了8%, 硼硅酸盐玻璃样品硬度却下降了36%; 其次是石英玻璃和硼硅酸盐玻璃模量变化的趋势完全不同, 辐照后的硼硅酸盐玻璃模量下降了19%, 石英玻璃模量却上升了10%; 最后是硼硅酸盐玻璃的硬度和模量都可以用(4)和(5)式去拟合, 但是石英玻璃的硬度和模量却很难用(4)和(5)式去拟合. 这些都说明辐照后的石英玻璃和硼硅酸盐玻璃硬度和模量的变化遵循不同的规律.

首先讨论硬度的差异. Xe离子辐照石英玻璃和硼硅酸盐玻璃, 入射粒子的能量损失分为两类: 电子能损和核能损. Peng等^[18,28]认为核能损是引起硬度下降的主要原因. 最近Peuget等^[23,24]通过快重离子辐照实验指出, 当电子能损超过一定的阈值, 电子能损也会起作用, 甚至He离子辐照对玻璃会有部分的修复作用. Peng等^[18,28]通过研究重离子辐照硼硅酸盐玻璃, 其研究的能区低于Peuget等^[23,24]的阈值, 认为电子能损不是引起硬度下降的主要原因. 因为电子能损主要导致靶原子激发电离, 很少造成靶原子离位, 无法破坏玻璃的网络体结构, 因此对硬度变化贡献很小. Zhang等^[15]的

实验结果也证实了这一点. 而且 Peng 等^[18]对比掺²⁴⁴Cm 的放射性玻璃样品进行分析, 考虑两种粒子的沉积能量: α 粒子和反冲核, 虽然 α 粒子携带的能量大, 但是 α 粒子核能损小电子能损大. 反冲核虽然携带的能量小, 但是核能损大电子能损小. 如果只考虑 α 粒子沉积能量, 理论计算的结果和硬度的测试结果是不符合的, 如果只考虑反冲核沉积能量, 计算的结果和硬度测试的结果是近似符合的. 最终通过计算发现反冲核的核能损比 α 粒子的核能损大几倍, 所以认为核能损是造成玻璃硬度下降的主要原因. Peugeot 等^[6,29]、Karakurt 等^[21]发现随着辐照剂量的增加, 玻璃的硬度和模量呈现整体下降的趋势. 玻璃硬度下降百分比均在 30% 以上, 然而辐照后的石英玻璃样品硬度只下降了 8%, 石英玻璃主要是由硅氧四面体构建的, 硼硅酸盐玻璃中不仅有硅氧四面体还有硼氧四面体、 BO_3 的三元环结构以及与硼硅有关的连接. 所以不难发现硬度下降的幅度与组分有很大的关系, 石英玻璃并不能完全代替硼硅酸盐玻璃, 影响硼硅酸盐玻璃硬度变化的主要原因可能是硼硅酸盐玻璃中硼元素组分起到重要作用

其次讨论模量的差异. 文献^[30, 31]通过对比非晶 SiO_2 和石英玻璃数据进行拟合分析, 得到石英玻璃折射率 n 与密度 ρ 有如下关系式:

$$n = 1.017 + 0.20\rho. \quad (7)$$

可以看出 n 随着 ρ 的增大而增大, 表明随着密度增加, 折射率也随之增加. 因为石英玻璃的折射率随着剂量增加而整体上升, 所以石英玻璃的密度随着剂量增加而整体增加. 根据拟合公式以及折射率变化曲线可以求出石英玻璃密度随着辐照剂量大约上升了 1.4%.

Makishima 和 Mackenzie 根据 Gilman 理论模型来解释玻璃的弹性模量最接近实验结果^[32,33](M-M 理论).

$$\begin{aligned} E &= 2V_t \sum_i G_i X_i, \\ V_t &= \frac{\rho}{M} \sum_i V_i X_i, \end{aligned} \quad (8)$$

式中, E 是玻璃的理论计算弹性模量 (GPa), V_t 是堆积密度, G_i 是 i 组分氧化物 M_xO_y 的单位体积离解能 (kJ/cm^3), X_i 是 i 组分氧化物 M_xO_y 的摩尔分数, V_i 是 i 组分氧化物 M_xO_y 的堆积密度因子, ρ 是玻璃密度 (g/cm^3), M 是玻璃的摩尔质量.

通过折射率的结果可知, 随着辐照剂量的增加, 石英玻璃的密度不断增加. 而 M-M 理论存在一定的缺陷, 并没有考虑到无规则的情况下堆积密度因子会增加^[33]. 所以推测随着辐照剂量增加, 堆积密度因子也随之增加. 由 (8) 式可知石英玻璃的密度和堆积密度因子的增加会导致石英玻璃弹性模量的增加. 由此可知石英玻璃模量的上升可能是由于密度以及堆积密度因子上升导致的, 所以石英玻璃模量的结果与折射率的结果相符合. 硼硅酸盐玻璃模量的下降可能是辐照后硼硅酸盐玻璃密度的下降所导致的, Peugeot 等^[4]证实了这点, 玻璃辐照后密度会下降.

辐照后的石英玻璃由于网络体结构被破坏, 本身的强度会减小, 但是密度却上升, 由于这两种效应相互抵消, 所以石英玻璃硬度下降的幅度不大; 但是对于硼硅酸盐玻璃而言, 其本身的强度以及密度均是下降的, 由于这两种效应相互叠加所以硼硅酸盐玻璃硬度下降的幅度比较大.

通过研究发现, 辐照前后硼硅酸盐玻璃硬度下降了 36%, 模量下降了 19%. 辐照前后石英玻璃硬度下降了 8%, 模量并没有下降, 反而上升了 10%. 由于辐照后硼硅酸盐玻璃硬度下降的百分比大于石英玻璃硬度下降的百分比, 石英玻璃和硼硅酸盐玻璃模量变化的趋势有很大的差异, 硼硅酸盐玻璃的硬度和模量都可以用 (4) 和 (5) 式去拟合, 但是石英玻璃的硬度和模量却很难用 (4) 和 (5) 式拟合. 所以影响硼硅酸盐玻璃硬度和模量变化的主要原因可能并不只是由于石英玻璃网络聚合体所导致的, 石英玻璃并不能完全代替硼硅酸盐玻璃, 影响硼硅酸盐玻璃硬度和模量变化的主要原因可能是硼硅酸盐玻璃中硼元素组分起到了重要作用.

4 总 结

本文利用 Xe 离子多束辐照石英玻璃和硼硅酸盐玻璃, 利用纳米压痕技术和椭圆偏振仪表征了辐照前后样品的硬度、模量以及折射率的变化. 石英玻璃样品硬度下降了 8%, 模量上升了 10%, 折射率上升了 1%, 密度大约上升了 1.4%. 硼硅酸盐玻璃样品硬度下降了 36%, 模量下降了 19%, 折射率下降了 2%. 硬度下降主要是核能损导致的, 石英玻璃和硼硅酸盐玻璃模量与折射率变化可能是密度和堆积密度因子变化所导致的. 影响硼硅酸盐玻璃硬度和模量变化的主要原因可能是硼硅酸盐玻璃中

硼元素组分起到了重要作用, 石英玻璃并不能完全代替硼硅酸盐玻璃, 为此下一步将继续探究硼硅酸盐玻璃中硼元素组分对辐照后硼硅酸盐玻璃的硬度和模量的影响.

感谢中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所在纳米压痕测试中的技术支持; 感谢中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态离子综合研究平台提供的束流条件.

参考文献

- [1] Weber W J, Matzke H, Routort J L 1984 *J. Mater. Sci.* **19** 2533
- [2] Weber W J 1988 *Nucl. Instrum. Meth. B* **32** 471
- [3] Weber W J, Ewing R C, Angell C A, Arnold G W, Cormack A N, Delaye J M, Griscom D L, Hobbs L W, Navrotsky A, Price D L, Stoneham A M, Weinberg M C 1997 *J. Mater. Res.* **12** 1948
- [4] Peugeot S, Fares T, Maugeri E A, Caraballo R, Charpentier T, Martel L, Somers J, Janssen A, Wiss T, Rozenblum F, Magnin M, Deschanel X, Jégou C 2014 *Nucl. Instrum. Meth. B* **327** 22
- [5] Peugeot S, Noël P Y, Loubet J L, Pavan S, Nivet P, Chenet A 2006 *Nucl. Instrum. Meth. B* **246** 379
- [6] Peugeot S, Delaye J M, Jégou C 2014 *J. Nucl. Mater.* **444** 76
- [7] Peugeot S, Broudic V, Jégou C, Frugier P, Roudil D, Deschanel X, Rabiller H, Noel P 2007 *J. Nucl. Mater.* **362** 474
- [8] Ollier N, Champagnon B, Boizot B, Guyot Y, Panczer G, Padlyak B 2003 *J. Non-Cryst. Solids* **323** 200
- [9] Ollier N, Boizot B, Reynard B, Ghaleb D, Petite G 2005 *J. Nucl. Mater.* **340** 209
- [10] Ollier N, Boizot B, Reynard B, Ghaleb D, Petite G 2004 *Nucl. Instrum. Meth. B* **218** 176
- [11] Mohapatra M, Kadam R M, Mishra R K, Kaushik C P, Tomar B S, Godbole S V 2011 *Physica B* **406** 3980
- [12] Mohapatra M, Kadam R M, Mishra R K, Dutta D, Pujari P K, Kaushik C P, Kshirsagar R J, Tomar B S, Godbole S V 2011 *Nucl. Instrum. Meth. B* **269** 2057
- [13] Mohapatra M, Manchanda V K 2009 *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.* **2** 012022
- [14] Yang K J, Wang T S, Zhang G F, Peng H B, Chen L, Zhang L M, Li C X, Tian F, Yuan W 2013 *Nucl. Instrum. Meth. B* **307** 541
- [15] Zhang G F, Wang T S, Yang K J, Chen L, Zhang L M, Peng H B, Yuan W, Tian F 2013 *Nucl. Instrum. Meth. B* **316** 218
- [16] Chen L, Wang T S, Yang K J, Peng H B, Zhang G F, Zhang L M, Jiang H, Wang Q 2013 *Nucl. Instrum. Meth. B* **307** 566
- [17] Chen L, Yuan W, Nan S, Du X, Zhang D F, Lü P, Peng H B, Wang T S 2016 *Nucl. Instrum. Meth. B* **370** 42
- [18] Peng H B, Sun M L, Yang K J, Chen H, Yang D, Yuan W, Chen L, Duan B H, Wang T S 2016 *J. Non-Cryst. Solids* **443** 143
- [19] Wang T S, Duan B H, Tian F, Peng H B, Chen L, Zhang L M, Yuan W 2015 *Chin. Phys. B* **24** 076102
- [20] Wang T S, Du X, Yuan W, Duan B H, Zhang J D, Chen L, Peng H B, Yang D, Zhang G F, Zhu Z H 2016 *Surf. Coat. Technol.* **306** 245
- [21] Karakurt G, Abdelouas A, Guin J P, Nivard M, Sauvage T, Paris M, Bardeau J F 2016 *J. Nucl. Mater.* **475** 243
- [22] Inagaki Y, Furuya H, Idemitsu K, Banba Y, Matsumoto S, Muraoka S 1991 *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **257** 199
- [23] Mir A H, Monnet I, Toulemonde M, Bouffard S, Jegou C, Peugeot S 2016 *J. Nucl. Mater.* **469** 244
- [24] Mir A H, Toulemonde M, Jegou C, Miro S, Serruys Y, Bouffard S, Peugeot S 2016 *Sci. Rep.* **6** 30191
- [25] Routbort J L, Matzke H 1983 *J. Mater. Sci. Eng.* **58** 229
- [26] Joslin D L, Oliver W C 1990 *J. Mater. Res.* **5** 123
- [27] Zhu D R, Lai T S 1997 *Acta Sci. Natur. Univ.* **36** 31 (in Chinese) [朱德瑞, 赖天树 1997 中山大学学报 (自然科学版) **36** 31]
- [28] Peng H, Sun M, Du X, Yuan W, Yang D, Chen L, Duan B, Wang T 2017 *Nucl. Instrum. Meth. B* **406** 561
- [29] Peugeot S, Cachia J N, Jégou C, Deschanel X, Roudil D, Broudic V, Delaye J M, Bart J M 2006 *J. Nucl. Mater.* **354** 1
- [30] Arndt J, Devine R A B, Revesz A G 1991 *J. Non-Cryst. Solids* **131–133** 1206
- [31] Arndt J, Stöffler D 1969 *Phys. Chem. Glasses* **10** 117
- [32] Makishima A, Mackenzie J 1973 *J. Non-Cryst. Solids* **12** 35
- [33] Chi Y S, Shen J Y, Chen X X, Miu Z X 2002 *J. Inorg. Mater.* **17** 475 (in Chinese) [迟玉山, 沈菊云, 陈学贤, 缪之训 2002 无机材料学报 **17** 475]

Comparative studies of irradiation effects in borosilicate glass and fused silica irradiated by energetic Xe ions^{*}

Peng Hai-Bo¹⁾ Liu Feng-Fei¹⁾ Zhang Bing-Tao¹⁾ Zhang Xiao-Yang¹⁾ Sun Meng-Li¹⁾
Du Xin¹⁾ Wang Peng²⁾ Yuan Wei¹⁾ Wang Tie-Shan¹⁾ Wang Jian-Wei³⁾†

1) (*School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China*)

2) (*School of Physics Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China*)

3) (*Microsystem and Terahertz Research Center, China Academy of Engineering Physics, Chengdu 610200, China*)

(Received 25 September 2017; revised manuscript received 10 November 2017)

Abstract

As the first safety barrier of high level radioactive waste, the tolerance to radiation of vitrification is critical. Vitrification is a kind of specialized glass used as the package of high-level radioactive waste in nuclear power industry. Because of its structural consistency with the main structure of vitrification (silicon-oxygen tetrahedron), fused silica is used to study the irradiation effect on network of vitrification in the present study. Borosilicate glass, a simplified version of vitrification, is studied under the same conditions for comparison. Hardness values, moduli and refractive indexes of fused silica and borosilicate glass are measured before and after irradiation with nanoindentation technology and elliptic polarization instrument. It is shown in this study that the hardness values of fused silica and borosilicate glass decrease with increasing dose. On the other hand, with dose increasing, the modulus of borosilicate glass decreases but the modulus of silica increases. Change in modulus might be attributed to the change of density, which is consistent with results from the refractive index.

Keywords: fused silica, borosilicate glass, effect of irradiation

PACS: 81.05.Je, 64.70.ph, 61.80.Jh

DOI: 10.7498/aps.67.20172117

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11505085, 11505086) and the Teaching Research Project Foundation of Lanzhou University, China (Grant No. 201621).

† Corresponding author. E-mail: wangjianwei@mtrc.ac.cn