硼硅酸盐玻璃离子辐照效应的研究

彭海波^{1*}, 刘枫飞¹, 孙梦利¹, 张建东¹, 杜鑫¹, 张晓阳¹, 王广甫², 王铁山¹

1. 兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000;

2. 北京师范大学核科学与技术学院, 北京 100875

*联系人, E-mail: penghb@lzu.edu.cn

收稿日期: 2018-06-16; 接受日期: 2018-09-29; 网络出版日期: 2019-06-12

国家自然科学基金(编号: 11505085)、中央高校基本科研业务费(编号: lzujbky-2018-72)和甘肃省引导科技创新发展专项资金(编号: 2018ZX-07)资助项目

摘要 玻璃固化是目前国际上广泛采用的处理高放废物的方式. 硼硅酸盐玻璃作为固化体备选材料之一, 其辐照效应引起了人们的重视. 本工作利用不同种类重离子辐照硼硅酸盐玻璃来研究其辐照效应, 利用飞行时间二次离子质谱、原子力显微镜和纳米压痕的方式测量辐照后样品的元素分布、体积改变以及硬度和模量的改变. 研究发现, 辐照后玻璃元素仍呈均匀分布, 产生了3.5%的体积膨胀. 硬度和模量都出现迅速降低随后饱和的趋势, 其饱和硬度和模量分别下降了35.4%和18.7%. 根据实验结果可以得出, 离子辐照导致硼硅酸盐玻璃的宏观性质(硬度、模量等)显著改变. 由此可知在 α 衰变条件下, 硼硅酸盐玻璃的宏观性质也会显著改变. 核能量沉积是造成硼硅酸盐玻璃性质改变的重要原因. 衰变产生的 α 粒子和反冲核对硼硅酸盐玻璃性质改变都有贡献, 且都不能忽略. 可以用单能重离子辐照的方式, 同时模拟反冲核与 α 粒子的辐照损伤.

关键词 硼硅酸盐玻璃, 辐照效应, 硬度

PACS: 61.43.Fs, 61.80.Jh, 46.55.+d

能源危机和雾霾治理是困扰当今中国的重要问题. 用核电代替火电可以有效地缓解上述问题. 到2020年中国核电的装机容量将达到5800万千瓦, 由核电产生的乏燃料累计将达到 7×10^6 kg. 处理乏燃料产生的高放废物已成为一个亟待解决的问题. 国际上处理高放废物的通用方法是玻璃固化-地质处置, 即将高放废物固溶在玻璃体中并深埋于地表以下500–1000 m. 硼硅酸盐玻璃以其优异的性能被大多数国家选作固化体材料. 然而, 在严苛的辐照条件下, 辐照是否会导致硼

硅酸盐玻璃性质的改变是人们广泛重视的问题^[1–5].

Weber等人^[2,6,7]介绍了不同固化体中的 α 、 β 和 γ 辐照效应, 并且将压痕引入玻璃固化体的表征中, 测量了玻璃固化体的断裂韧性、硬度和模量等参数. Boizot等人^[8]利用电子顺磁共振技术研究了 β 辐照简单配方玻璃固化体的缺陷浓度随剂量变化的关系. Ollier等人^[9,10]使用拉曼光谱和吸收光谱研究了 β 辐照不同组分钠玻璃中钠组分的迁移以及辐照后玻璃微观结构的变化. 随后又发现 β 辐照后玻璃中会产生氧分子. Zhang

引用格式: 彭海波, 刘枫飞, 孙梦利, 等. 硼硅酸盐玻璃离子辐照效应的研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2019, 49: 114610

Peng H B, Liu F F, Sun M L, et al. Radiation effects on borosilicate glass irradiated with ions (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2019, 49: 114610, doi: 10.1360/SSPMA2018-00228

等人^[11]也发现离子辐照后玻璃材料会产生分子氧, 同时硬度会呈现下降的趋势. Peugeot等人^[12,13]使用短寿命²⁴⁴Cm掺杂R7T7玻璃模拟长寿命放射性核素的 α 衰变所导致的辐照效应, 发现随着累计 α 衰变次数的增加, 玻璃的硬度和模量都会下降, 并指出 α 衰变的核能量沉积对玻璃性质的改变起主要作用. Peng等人^[14]对比了离子辐照不同组分玻璃硬度变化规律与极短寿命放射性核素掺杂实验结果, 也指出核能量沉积导致二氧化硅的结构改变最终引起了硬度下降. Chen等人^[15,16]使用Kr和Xe离子辐照玻璃给出了相似实验结果, 同时通过测量辐照后玻璃拉曼谱的改变, 也指出与硅有关的结构改变会导致硬度改变. Kieu等人^[17]和Kilymis等人^[18]综合利用分子动力学和快速退火的方式模拟了辐照损伤, 指出与硅有关和硼有关的结构改变可能是辐照后硬度变化的原因. Yuan等人^[19]也利用分子动力学手段直接模拟离子辐照导致硼硅酸盐玻璃的硬度下降, 结果指出硬度下降只与硼结构改变有关. Mir等人^[20-22]利用快重离子辐照硼硅酸盐玻璃, 提出电离能量沉积导致硬度下降, 并指出氦离子辐照对玻璃的缺陷有修复作用. 这使得硬度下降的机理变得更加复杂.

为了解释硼硅酸盐玻璃硬度和模量改变的原因, 我们利用不同种类离子以不同方式辐照硼硅酸盐玻璃, 测量了辐照后玻璃的硬度、模量和体积变化来研究硼硅酸盐玻璃的辐照效应.

1 材料和方法

硼硅酸盐玻璃(命名为NBS2玻璃)中组分SiO₂, B₂O₃和NaO₂的质量百分比分别为65.2%, 18.8%和16.0%. 经过熔融(1200°C)并搅拌4 h以去除气泡, 然后在500°C退火24 h, 经过切割抛光得到10 mm×10 mm×1 mm的未辐照样品. 辐照实验分别在中国科学院近代物理研究所320 kV平台、北京师范大学离子注入机和四川大学串联静电加速器上开展. 表1给出了离子种类、能量、最大射程和辐照方式. Kr和Ar离子辐照过程的具体描述见文献^[23,24]. P离子辐照实验在北京师范大学完成, 辐照过程中束斑大于10 mm×10 mm, 因此能够保证辐照是均匀的, 典型辐照流强为微安. Au离子辐照束斑为20 mm×20 mm. 所有的辐照过程在常温和真空条件下(真空度好于10⁻³ Pa)进行.

单束辐照和多束辐照的区别在于前者造成的单粒

子损伤分布不是均匀的. 而对于Xe多束辐照方式, 1.6, 3.2和5 MeV能量的Xe离子辐照的剂量比为1:1.1:4.3, 可以在玻璃表面产生均匀损伤分布. 通过SRIM2008程序模拟可以得到Xe离子单束辐照和Xe离子多束辐照后的典型损伤分布, 如图1(a)所示^[25]. 图1(b)中可以看出尽管单束辐照损伤层不均匀, 但是其损伤分布可以近似认为是均匀的. 对具有不均匀损伤分布的单束辐照, 其辐照剂量采用等效平均方法, 即认为单束辐照损伤是近似均匀分布的, 如图1(b)虚线所示, 虚线以下矩形面积等于实线围成的面积. Xe离子单束辐照的样品还采用了半遮挡方式, 辐照时将样品一半直接辐照, 另一半用厚度为7 μ m的铝箔遮蔽, 利用原子力显微镜测量辐照前后样品高度差, 来研究辐照前后样品的体积变化.

表 1 不同辐照方式下离子在硼硅酸盐玻璃中的射程

Table 1 The ranges of ions with different irradiation in borosilicate glass

辐照方式	离子	能量 (MeV)	射程 (μ m)
单束辐照	Kr ¹⁷⁺	4.0	2.41
单束辐照	Xe ²³⁺	5.0	1.97
单束辐照	P ⁺	0.3	0.43
单束辐照	Au ³⁺	8.0	2.00
多束辐照	Xe ²³⁺	5.0	1.97
		3.2	1.30
		1.6	0.64

图 1 (网络版彩图)单束、多束Xe离子辐照硼硅酸盐玻璃损伤分布图. (a) 多束辐照损伤分布; (b) 单束辐照

Figure 1 (Color online) Damage distribution in borosilicate glass with irradiation of single and multi Xe beams. (a) For damage distribution of multi-energy Xe beam and (b) for damage distribution of single-energy Xe beam.

2 样品分析

辐照后的样品, 采用ToF-SIMS(Time-of-Flight Secondary Ion Mass Spectrometry)技术给出了Xe离子单束辐照条件下的硼硅酸盐玻璃 ^{23}Na , ^{11}B 和 ^{28}Si 元素随深度分布的结果, 如图2所示. 二次离子质谱实验利用ToF-SIMS装置(IONTOF公司, 德国)测量. 该装置配备了25 keV的Bi团簇离子源, 同时配备了能量在10–20 keV的Ar和能量1–2 keV的 Cs^+ 和 O^+ 溅射源. 二次离子测试过程中先用 O^{2+} 溅射源剥离出 $300\text{ }\mu\text{m}\times 300\text{ }\mu\text{m}$ 区域, 然后用Bi离子束在溅射中心区域进行分析, 分析面积为 $50\text{ }\mu\text{m}\times 50\text{ }\mu\text{m}$. Bi离子束在分析过程中的流强稳定为1 pA, 测试过程中靶室真空度好于 $1\times 10^{-6}\text{ Pa}$. 图中从上至下依次为未辐照、辐照剂量为0.03 dpa和辐照剂量为1 dpa硼硅酸盐玻璃样品的元素分布. 从图2中可以看出离子辐照不会造成玻璃中元素迁移.

辐照后我们测量了样品的硬度和模量. 硬度测试是在苏州纳米所利用Nano Indenter G200型纳米压痕仪进行(大气条件, 连续刚度模式). 典型的硬度和模量随压痕深度分布曲线如图3所示. 辐照前后样品的硬度和模量值可以由辐照剂量一半处曲线外推的方式得到. 关于离子辐照后硬度的测量以及分析的详细过程可以见文献[23,26].

为了测量辐照导致样品的体积变化, 我们将样品一半用 $7\text{ }\mu\text{m}$ 厚铝膜遮挡, 这样辐照和未辐照的样品会出现明显的高度差. 假定辐照后样品沿着束流方向的表面积不变, 通过测量高度差可以估计损伤层厚度变化, 进而得到离子辐照样品的体积变化. 样品的高度差是利用Nanosurf公司Nanion AFM测量得到的. 该设备在Z方向的分辨率为0.1 nm.

3 实验结果与分析

3.1 单束辐照与多束辐照对比

图4给出了Xe, Kr离子单束辐照与Xe离子多束辐照后硼硅酸盐玻璃硬度和模量的相对变化结果. 比较Xe单束与Xe多束辐照, 可以看出无论对于硬度还是模量, 其随辐照剂量的变化趋势相同. 即硬度和模量的相对变化值随辐照剂量迅速下降然后达到饱和, 且饱和值不随辐照方式的改变而改变. 硬度相对改变的饱和

图2 (网络版彩图)离子辐照前后, 硼硅酸盐玻璃的元素分布

Figure 2 (Color online) Elemental distributions in borosilicate glass with or without irradiation.

图3 (网络版彩图)未辐照和辐照后硼硅酸盐玻璃硬度(a)和模量(b)随压痕测量曲线

Figure 3 (Color online) Measured hardness and modulus curves of borosilicate glass with or without irradiation. (a) For hardness curves and (b) for modulus curves.

值为-35.0%, 模量相对改变的饱和值为-18.4%. 作为对比, 我们比较了Kr单粒子下辐照硼硅酸盐玻璃相对硬度变化和相对模量变化的下降趋势, 可以看出Xe离子单束辐照和多束辐照的硬度和模量相对变化的饱和值与不同种类离子单束辐照对应的饱和值相同. 三种辐照方式的差异在于对应的辐照剂量不同, 这是由于

图 4 (网络版彩图)单束辐照和多束辐照后硼硅酸盐玻璃硬度(a)和模量(b)相对变化趋势

Figure 4 (Color online) Hardness (a) and modulus (b) variations of borosilicate glass with irradiation of single and multi energied beams evolved with dose.

辐照剂量的计算方式不同. 多束辐照的损伤层是均匀分布的, 其辐照剂量在测量区域是确定的. 而单束辐照由于损伤分布不均匀, 实际计算时采用平均等效来近似处理, 这会导致计算得到的辐照剂量与多束辐照的不同且存在误差. 以能量为 5 MeV 注量为 3.0×10^{13} Xe 离子入射硼硅酸盐玻璃为例, 假设 Xe 离子产生 $2 \mu\text{m}$ (离子射程) 均匀损伤层, 平均辐照剂量为 0.51 dpa, 如果离子在玻璃中存在损伤分布, 则测试区域(对应辐照损伤应为 0–1600 nm)对应辐照剂量为 0.42 dpa. 两种方法计算得到辐照剂量误差为 25%. 尽管辐照剂量存在上述差异, 我们的结果仍然显示单束和多束辐照条件下, 硬度和模量饱和值差异很小. 在低能条件下, 多束辐照实验结果可以用单束近似. 在后来实验中由于技术原因, 我们仅采用单束辐照方式开展实验.

3.2 不同种类、能量离子辐照对比

图 5 展示了不同能量不同离子种类的单能离子辐照导致玻璃硬度和模量改变的相对值随辐照剂量演化趋势. 对比了 7 MeV 金离子和 1 MeV 氦离子辐照 SON68 玻璃的硬度和模量的变化趋势^[27]. Karakurt 等人^[27]在硬度和模量测试中仅测量了表面 300 nm 处的硬度和模量. Kilymis 等人^[18]通过分子动力学模拟指出,

图 5 (网络版彩图)不同种类单能离子束辐照玻璃样品的硬度(a)和模量(b)随辐照剂量变化趋势^[27]

Figure 5 (Color online) The dependence of hardness (a) and modulus (b) of glasses irradiated with single-energy ions on the radiation dose [27].

当纳米压痕压入深度为 a 时, 反映出深度达 $2a$ 区域的硬度性质. 因此, Karakurt 等人在实验中反映的是深达 600 nm 范围内损伤层的性质. 所以, 图 5 中的辐照剂量取 0 nm (表面) 到 600 nm 的平均辐照剂量. 从图 5 中可以看出硬度和模量服从迅速降低然后饱和的趋势, 可以用下式来描述这一趋势

$$v = v_{\text{sat}}(1 - e^{-D/t}), \quad (1)$$

其中 v 对应特定辐照剂量的硬度和模量的相对改变; v_{sat} 对应硬度、模量相对改变的饱和值; D 是单束离子辐照剂量, 单位为 dpa; t 为拟合衰减常数, 单位为 dpa. 硬度和模量拟合参数和误差见表 2. 对比拟合曲线和实验点可以看出实验点与拟合曲线符合得较好. 对于 P 离子入射, 实验与拟合参数相差较大, 这可能是由于 P 离子入射射程很短, 导致硬度和模量的测量明显受到压头钝化效应的影响.

3.3 辐照后损伤层体积变化

图 6 给出了单能 Xe 离子辐照硼硅酸盐玻璃的体积变化趋势. 其中辐照区厚由 SRIM 程序计算得到, 厚度的改变可以对比未辐照和辐照后样品的高度差来得到. 假定辐照前后样品沿束流方向面积不变, 可得

表 2 单能离子辐照硼硅酸盐玻璃的硬度和模量变化拟合曲线参数及对应误差

Table 2 For irradiation of single energy ions, the parameters and corresponding errors of fitting curves that present hardness and modulus of borosilicate glass evolved with irradiation dose

测量	v_{sat} (%)	Δv_{sat} (%)	t (dpa)	Δt (dpa)
硬度	-35.4	1.1	0.0064	7×10^{-4}
模量	-18.7	0.6	0.015	0.0018

图 6 单能Xe离子辐照条件下, 体积随剂量变化趋势图

Figure 6 Volume of borosilicate glass irradiating by single energy Xe ions changed with dose.

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{\Delta H}{R}, \quad (2)$$

其中 ΔV 对应辐照后体积改变, V 对应辐照造成损伤的体积, ΔH 是通过AFM测量的高度差, R 是通过SRIM计算出的射程. 高度测量误差由未辐照与辐照后样品粗糙度得出. 从图6可以看出辐照后样品的体积迅速增大然后再饱和, 饱和后总的体积增加达到3.5%.

Peuget等人^[12,13]给出了Kr离子辐照R7T7玻璃导致硬度下降30%、模量下降20%的结果, 并将此结果与短寿命²⁴⁴Cm掺杂的R7T7玻璃的依赖于累计 α 衰变数的硬度变化对比, 认为核能损导致的玻璃网络体结构改变是硬度变化的原因, 电子能损对网络体结构影响很小. Peng等人^[23,28]通过不同能量离子辐照佐证了这个观点. 最近Mir等人^[21,29]提出高电子能损($E_e > 4$ keV)辐照条件下, 电子能损引起的热能量沉积也会使玻璃网络结构改变, 进而导致玻璃硬度改变. 然而如此大的电子能损对应的是快重离子(Swift Heavy Ion, SHI)辐照, α 衰变产生的离子是能量约为5 MeV的 α 粒子和能量约为100 keV的反冲核. 对于这两种入射粒子, 在玻璃材料中产生的电子能损远远小于4 keV. 因此在 α 衰变过程中, 可以忽略电子能损对玻璃材料的影响.

通过比较单束入射和多束入射的辐照效应(图4), 我们得出可以用单能离子束辐照硼硅酸盐玻璃产生的损伤来模拟均匀损伤的分布对材料影响的结论. 通过对比不同能量、种类离子入射硼硅酸盐的玻璃辐照效应(图5), 可以发现, 氦离子与金离子产生的辐照效应相同, 氦离子可以等效为 α 粒子; 同时8 MeV的Au离子与5 MeV的Xe离子、4 MeV的Kr离子和0.3 MeV的P离子产生的辐照效应相同. 因此可以使用高能量的重离子辐照玻璃来等效 α 衰变的反冲核在玻璃中产生的辐照效应^[23]. 辐照后材料的硬度和模量与辐照剂量有关, 与入射离子种类和能量无关. 而辐照剂量是离子在玻璃中的核能量沉积决定的. 因此可以认为玻璃材料性质改变只与材料中的核能量沉积有关. α 粒子和反冲核与固化体材料相互作用会导致材料宏观性能的改变, 这主要是由核能量在材料中沉积导致的原子离位产生的. 因此, 从核能量沉积的角度考虑, α 粒子和反冲核实际上并无不同, 在 α 衰变中, 反冲核与 α 粒子造成原子离位数目之比约为7:1. 对于材料的影响必须同时考虑 α 粒子和反冲核的贡献, 且反冲核对材料的影响大于 α 粒子的影响. 这与Peng等人^[14]以前的讨论结果相同. 而这两种粒子辐照效应可以用低能的单能离子($E_e < 4$ keV)入射来模拟. 图5表明硼硅酸盐玻璃和SON68玻璃硬度和模量变化曲线并不完全相同, 这可能是由玻璃组分的差异产生的. 对比我们以前工作中不同组分玻璃的硬度和模量变化趋势也能够看到类似的差异^[23].

对于硬度和模量的变化机理, 通过分析辐照后的拉曼光谱, Peuget等人^[30,31]认为硅网络结构聚合度的降低是硬度下降的主要原因. Kieu等人^[17]和Kilymis等人^[18]使用分子动力学模拟了玻璃材料的损伤过程, 结果表明辐照后硅键角发生了改变, 且部分 BO_4 结构转变为 BO_3 结构. Yuan等人^[19]使用分子动力学模拟了离子辐照硼硅酸盐玻璃的过程, 并且模拟了硬度测量过程, 指出Si—O—B键断裂是硬度下降的可能原因, 且

硼元素在硬度下降过程起了重要作用. Peng等人^[24]通过比较熔融石英和硼硅酸盐玻璃的辐照效应, 证实了硼元素在辐照导致硼硅酸盐玻璃硬度下降的过程中起重要作用. 因此我们认为在离子辐照导致硼硅酸盐玻璃硬度下降的物理过程中Si—O—B键断裂是硬度下降的可能原因, 且该键的断裂是由核能损导致的.

4 结论

本工作使用不同能量、不同种类离子辐照了硼硅酸盐玻璃, 测量了多束辐照条件下, 硼硅酸盐玻璃样品的元素分布, 得出辐照后硼硅酸盐玻璃元素的差异没有明显改变的结果, 同时得出辐照后的玻璃体积会增长3.5%的结果. 通过对比不同种类离子辐照硼硅酸盐玻璃硬度改变, 发现虽然入射离子种类、能量不同, 但是其硬度和模量改变规律相同. 由此推出虽然 α 衰变的产物 α 粒子和反冲核的离子种类与能量不同, 但

是它们对硼硅酸盐玻璃宏观性质影响结果是相同的. 辐照后硼硅酸盐玻璃硬度和模量都随着辐照剂量呈统一的规律变化, 核能量沉积造成原子离位是硼硅酸盐玻璃宏观性质改变的重要原因. 衰变 α 粒子的电子能量沉积不大, 不足以对硼硅酸盐宏观性质产生明显影响. α 粒子与反冲核的核能量沉积在相同的量级, 都不能忽略. 通过对比单束辐照和多束辐照后硼硅酸盐玻璃的硬度和模量变化趋势, 发现随着剂量改变, 硼硅酸盐玻璃硬度和模量满足相似变化规律. 从而证实单束辐照可以近似模拟多束辐照硼硅酸盐玻璃硬度和模量的改变趋势. 在单能Xe离子辐照下, 硬度和模量分别下降了35.4%和18.7%. 通过改变入射离子种类和能量, 并且与他人实验结果相比较可以得出, 可以用单能离子同时模拟 α 粒子和反冲核在材料中的损伤过程^[1]. 此结论不但对玻璃固化体中天然 α 衰变的物理过程模拟至关重要, 而且对陶瓷固化等其他材料中的 α 衰变物理过程有借鉴作用.

致谢 感谢中国科学院近代物理研究所、北京师范大学和四川大学提供了束流辐照条件, 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以及ToF-SIMS测试中提供了技术支持.

参考文献

- 1 Antonini M, Manara A, Buckley S. Microstructural changes in irradiated silica based glasses. *Radiat Effects*, 1982, 65: 55–61
- 2 Weber W J. Radiation effects in nuclear waste glasses. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater At*, 1988, 32: 471–479
- 3 Inagaki Y, Furuya H, Idemitsu K, et al. Microstructure of simulated high-level waste glass doped with short-lived actinides, 238 pu and 244 cm. *MRS Proc*, 1991, 257: 199–206
- 4 Ewing R C, Weber W J, Clinard Jr F W. Radiation effects in nuclear waste forms for high-level radioactive waste. *Prog Nucl Energy*, 1995, 29: 63–127
- 5 Boizot B, Petite G, Ghaleb D, et al. Radiation induced paramagnetic centres in nuclear glasses by EPR spectroscopy. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater At*, 1998, 141: 580–584
- 6 Weber W J, Matzke H J. Fracture toughness in nuclear waste glasses and ceramics: Environmental and radiation effects. *Euro Appl Res Rep*, 1987, 7: 1221
- 7 Weber W J, Matzke H, Routbort J L. Indentation testing of nuclear-waste glasses. *J Mater Sci*, 1984, 19: 2533–2545
- 8 Boizot B, Petite G, Ghaleb D, et al. Dose, dose rate and irradiation temperature effects in β -irradiated simplified nuclear waste glasses by EPR spectroscopy. *J Non-Cryst Solids*, 2001, 283: 179–185
- 9 Ollier N, Champagnon B, Boizot B, et al. Influence of external β -irradiation in oxide glasses. *J Non-Cryst Solids*, 2003, 323: 200–206
- 10 Ollier N, Boizot B, Reynard B, et al. Analysis of molecular oxygen formation in irradiated glasses: A Raman depth profile study. *J Nucl Mater*, 2005, 340: 209–213
- 11 Zhang G F, Wang T S, Yang K J, et al. Raman spectra and nano-indentation of Ar-irradiated borosilicate glass. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater At*, 2013, 316: 218–221
- 12 Peugeot S, Cachia J N, Jégou C, et al. Irradiation stability of R7T7-type borosilicate glass. *J Nucl Mater*, 2006, 354: 1–13

- 13 Peugeot S, Noël P Y, Loubet J L, et al. Effects of deposited nuclear and electronic energy on the hardness of R7T7-type containment glass. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater At*, 2006, 246: 379–386
- 14 Peng H B, Sun M L, Yang K J, et al. Effect of irradiation on hardness of borosilicate glass. *J Non-Crystalline Solids*, 2016, 443: 143–147
- 15 Chen L, Yuan W, Nan S, et al. Study of modifications in the mechanical properties of sodium aluminoborosilicate glass induced by heavy ions and electrons. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater At*, 2016, 370: 42–48
- 16 Lv P, Chen L, Duan B H, et al. Composition dependence of mechanical property changes in electron irradiated borosilicate glasses. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater At*, 2017, 405: 61–66
- 17 Kieu L H, Kilymis D, Delaye J M, et al. Discussion on the structural origins of the fracture toughness and hardness changes in rapidly quenched borosilicate glasses: A molecular dynamics study. *Procedia Mater Sci*, 2014, 7: 262–271
- 18 Kilymis D A, Delaye J M. Deformation mechanisms during nanoindentation of sodium borosilicate glasses of nuclear interest. *J Chem Phys*, 2014, 141: 014504
- 19 Yuan W, Peng H, Sun M, et al. Structural origin of hardness decrease in irradiated sodium borosilicate glass. *J Chem Phys*, 2017, 147: 234502
- 20 Mir A H, Peugeot S, Toulemonde M, et al. Defect recovery and damage reduction in borosilicate glasses under double ion beam irradiation. *Europhys Lett*, 2015, 112: 36002
- 21 Mir A H, Monnet I, Toulemonde M, et al. Mono and sequential ion irradiation induced damage formation and damage recovery in oxide glasses: Stopping power dependence of the mechanical properties. *J Nucl Mater*, 2016, 469: 244–250
- 22 Mir A H, Toulemonde M, Jegou C, et al. Understanding and simulating the material behavior during multi-particle irradiations. *Sci Rep*, 2016, 6: 30191
- 23 Peng H B, Sun M L, Du X, et al. Variation of hardness and modulus of borosilicate glass irradiated with kr ions. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater At*, 2017, 406: 561–565
- 24 Peng H B, Liu F F, Sun M L, et al. Comparative studies of irradiation effects in borosilicate glass and fused silica irradiated by energetic Xe ions (in Chinese). *Acta Phys Sin-Ch Ed*, 2018, 67: 225–232
- 25 Ziegler J F, Biersack J P, Ziegler M D. SRIM-2008, Stopping Power and Range of Ions in Matter. United States, 2008
- 26 Sun M L, Peng H B, Duan B H, et al. Comparison of hardness variation of ion irradiated borosilicate glasses with different projected ranges. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater At*, 2018, 419: 8–13
- 27 Karakurt G, Abdelouas A, Guin J P, et al. Understanding of the mechanical and structural changes induced by alpha particles and heavy ions in the french simulated nuclear waste glass. *J Nucl Mater*, 2016, 475: 243–254
- 28 Peng H B, Liu F F, Guan M, et al. Variation of hardness and modulus of sodium borosilicate glass irradiated with different ions. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater At*, 2018, 435: 214–218
- 29 Mir A H, Monnet I, Boizot B, et al. Electron and electron-ion sequential irradiation of borosilicate glasses: Impact of the pre-existing defects. *J Nucl Mater*, 2017, 489: 91–98
- 30 Peugeot S, Delaye J M, Jégou C. Specific outcomes of the research on the radiation stability of the french nuclear glass towards alpha decay accumulation. *J Nucl Mater*, 2014, 444: 76–91
- 31 Bonfils J, Peugeot S, Panczer G, et al. Effect of chemical composition on borosilicate glass behavior under irradiation. *J Non-Cryst Solids*, 2010, 356: 388–393

Radiation effects on borosilicate glass irradiated with ions

PENG HaiBo^{1*}, LIU FengFei¹, SUN MengLi¹, ZHANG JianDong¹, DU Xin¹,
ZHANG XiaoYang¹, WANG GuangFu² & WANG TieShan¹

¹ School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China;

² School of Nuclear Science and Technology, Beijing Normal University, Beijing 100875, China

Vitrification is an extensively accepted method to deal with highly level radioactive waste (HLW). As one of the candidates for immobilizing HLW, the radiation effects on borosilicate glass attract extensive attention. In this work, borosilicate glass samples were irradiated with different ions and radiation effects were studied. The elemental distribution with depth, volume, hardness and modulus variations were measured by ToF SIMS, AFM and nano-indentation, respectively. Trends of changing then saturating in volume, hardness and modulus were illustrated with the increase of dose. The increase of 3.5% in volume, decrease of 35.4% and 18.7% in hardness and modulus, respectively, were measured. Macroscopic properties of borosilicate glass changed remarkably with irradiations of ions. Therefore, one can draw a conclusion that changes in the macroscopic properties (hardness and modulus) of borosilicate glass would happen in condition of alpha decay. Deposition of nuclear stopping in borosilicate glass was an important reason of variations of the macroscopic properties. Both the alpha particle and recoil nucleus contributed the changes in the macroscopic properties of borosilicate glass, none of them was negligible. The radiation effects by impact of alpha particles and recoil nucleus on borosilicate could be simulated by irradiation of single heavy energy ions. These are important to study the radiation effects of alpha decay on vitrification.

borosilicate glass, radiation effect, hardness

PACS: 61.43.Fs, 61.80.Jh, 46.55.+d

doi: [10.1360/SSPMA2018-00228](https://doi.org/10.1360/SSPMA2018-00228)