

基于SiC材料的激光加速质子束辐照特性研究

周丹晴 李东彧 陈艺 李越 杨童 程浩 吴旻剑 李昱泽
晏炆 夏亚东 林晨[†] 颜学庆[†] 赵子强[†]

北京大学核物理与核技术国家重点实验室, 北京 100871; [†]通信作者, E-mail: lc0812@pku.edu.cn (林晨),
x.yan@pku.edu.cn (颜学庆), zqzhao@pku.edu.cn (赵子强)

摘要 通过辐照核能材料 SiC, 表征激光加速质子束连续宽能谱、短脉冲和高瞬态流强的特点。将 SiC 样品放置在距离靶体 4 cm 处, 连续进行 300 发满足指数能谱分布的能量为 1~4.5 MeV 的激光加速宽能谱连续质子束辐照。表面和截面拉曼光谱显示辐照后的 SiC 散射峰强度减小, 且拉曼光谱截面测量的整体趋势可以与 SRIM 模拟的能谱加权后的深度能损分布对应, 从而通过实验对能量连续分布的激光加速质子束进行表征。此外, 实验结果显示, 激光加速质子束的短脉冲特性可在 SiC 表面产生相当高的瞬时束流密度。这种快速的宽能谱辐照为模拟反应堆中子辐照提供了可能性。

关键词 激光加速质子束; SiC; 宽能谱; 拉曼截面测量; 短脉冲

Study on the Irradiation Characteristics of Laser-Accelerated Proton Beam on SiC

ZHOU Danqing, LI Dongyu, CHEN Yi, LI Yue, YANG Tong, CHENG Hao, WU Minjian,
LI Yuze, YAN Yang, XIA Yadong, LIN Chen[†], YAN Xueqing[†], ZHAO Ziqiang[†]

State Key Lab of Nuclear Physics and Technology, Peking University, Beijing 100871; [†] Corresponding authors, E-mail:
lc0812@pku.edu.cn (LIN Chen), x.yan@pku.edu.cn (YAN Xueqing), zqzhao@pku.edu.cn (ZHAO Ziqiang)

Abstract By irradiating the nuclear material SiC, the characteristics of continuous wide energy spectrum, short pulse and high instantaneous current intensity of the laser-accelerated proton beam have been characterized. The SiC samples were placed at a distance of 4 cm from the target. The 300 shots proton beams were irradiated with a continuous wide energy spectrum proton beam of 1–4.5 MeV, which satisfied the exponential energy spectrum distribution. The surface and cross-section Raman characterizations showed that the intensity of the SiC scattering peaks after irradiation were reduced. The overall trend of Raman cross-section measurement was consistent with the depth of the distribution of energy loss by SRIM simulation. Thus, the experimental characterization of laser-accelerated proton beam with continuous energy distribution was realized. In addition, experiments showed that the short pulse characteristic of the laser-accelerated proton beam could produce a relatively high instantaneous beam current density on the SiC surface. The ultra-fast wide energy spectrum irradiation provides a possibility in simulated reactor neutron irradiation.

Key words laser-accelerated proton beam; SiC; wide energy spectrum; Raman cross-section measurement; short pulse

随着高功率激光技术的发展, 激光驱动离子加速成为激光等离子体相互作用领域的研究热点之一。超强激光与固体靶相互作用产生的 MeV 量级质子束具有瞬时流强高、脉宽短、宽能谱、大散角

和归一化发射度小等特点, 在质子成像、温稠密物质产生和癌症治疗等领域有广泛的应用^[1-6]。

加速生成的质子束具有超短的脉冲宽度, 可以产生非常大的瞬时束流强度, 在短时间内对材料造

成损伤。因此研究人员开展了激光加速质子束材料辐照的相关探索。例如,通过激光加速的质子束辐照 SiO₂ 玻璃和硼硅酸盐玻璃损伤产生的瞬时不透明度,测量出质子束具有皮秒量级的脉冲宽度,证实了激光加速产生的质子束可以提供超高瞬时通量辐照^[7]。激光加速质子束可以在短时间内对一些核设施材料(如钨、钛等金属和石墨等)产生机械损伤和热损伤^[8-9]。因此,对于长时间暴露于苛刻辐照环境下(尤其是对反应堆的核设施材料)的材料性能研究,激光加速质子束提供了更加快速有效的测试条件,可以有效地解决常规模拟反应堆中子辐照的放射性、长时间和难实施等问题^[10]。此外,由于反应堆中子能谱的连续多能性以及中子的辐照效应与质子相似^[11],激光加速质子束以其宽能谱的特点成为代替中子辐照的有效手段。

本文以有望应用于第四代核反应堆堆芯结构材料和核燃料包壳材料的 SiC^[12]为实验对象,通过分析激光加速质子束的 SiC 辐照效应,对其指数下降的宽能谱进行表征,从而更深入地认识激光加速质子束的特征,分析激光加速质子束模拟中子辐照的可能性。

1 辐照实验设置

激光加速质子束辐照 SiC 实验在北京大学 CLAPA (Compact LAsER Plasma Accelarator) 实验系统中进行。实验中,飞秒激光中心波长为 800 nm,脉宽为 30 fs,到靶能量为 1.3 J。经过 f/3.5 离轴抛物面镜聚焦后,从相对于靶面法线 30° 的方向入射到厚度为 5 μm 的塑料薄膜上。聚焦后的激光焦斑尺寸为 5 μm (FWHM),能量集中度为 30%,对应的激光强度为 6×10^{19} W/cm²。激光将靶体前表面瞬态电离,通过有质动力和共振加热等机制产生的热电子沿着靶体法线方向传输到靶后,产生强度高达 TV/m 的瞬态加速场,将靶材表面附着的水蒸气或其他碳氢物电离,并在微米尺度将质子束加速到 MeV 级别能量^[13]。实验中使用高重频自动打靶系统,打靶频率为 1 Hz,即每秒加速产生一发稳定的质子束。辐照时, SiC 样品以一定的辐照距离 d 置于靶材后方。实验如图 1 所示。

实验使用的样品是厚度为 330 μm 的 n 掺杂单晶 6H-SiC,大小为 5 mm×5 mm。其中 SiC(0001)面及两个侧面已预先抛光。将 SiC 放置于倾角为 7° 的楔形台上,使得当样品经过激光加速质子束辐照时,

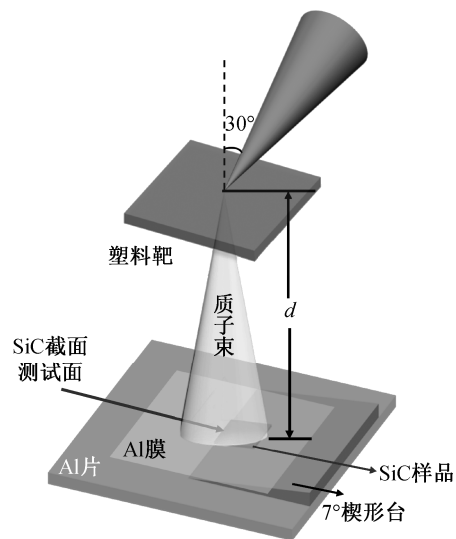


图 1 激光加速质子束辐照 SiC 示意图
Fig. 1 Schematic diagram of laser-accelerated proton beam irradiation of SiC

其中一个截面可以不受质子束照射,便于后续对深度处的辐照损伤进行表征。样品前覆盖一层 15 μm 厚的 Al 膜(熔点约为 660 °C),用于阻挡透射的激光和加速产生的重离子(17 MeV 的 C 离子和 25 MeV 的 O 离子在 Al 中的射程约为 15 μm)。经过 Al 膜阻挡层的过滤后,辐照到样品表面的主要为能量大于 1 MeV 的质子束(1 MeV 的 H 离子在 Al 中的射程约为 15 μm)。

2 实验结果和讨论

2.1 辐照距离影响

当激光加速质子束的打靶次数约为 300 发时,不同辐照距离下的样品光镜图见图 2。图 2(b)显示辐照距离为 5 mm 时的 SiC 表面,可以看出,样品表面覆盖的 Al 膜被烧穿,因此 SiC 样品上沉积大量加速生成的碳离子,使表面变黑,样品表面也有不同程度的损坏。这是由于在如此近的辐照距离下,激光加速的脉冲质子束以更短的脉宽(4 cm 时为 2.5 ns, 5 mm 时仅有 0.3 ns)和更小的束斑面积(半径 < 1 mm)轰击样品,使得样品表面瞬时束流强度变大(4 cm 时约为 12 nA, 5 mm 时为 93 nA),样品表面温度瞬时增加到大于 Al 膜熔点而产生热效应。此时,辐照样品的不仅有加速质子束,还有加速碳离子束。当辐照距离增至 4 cm(图 2(c))时,样品表面结构完整,不均匀的黑色斑点可能来自更高能的碳离子。为了分析激光加速质子束对 SiC 的损伤,后续采用辐照距离 $d=4$ cm。

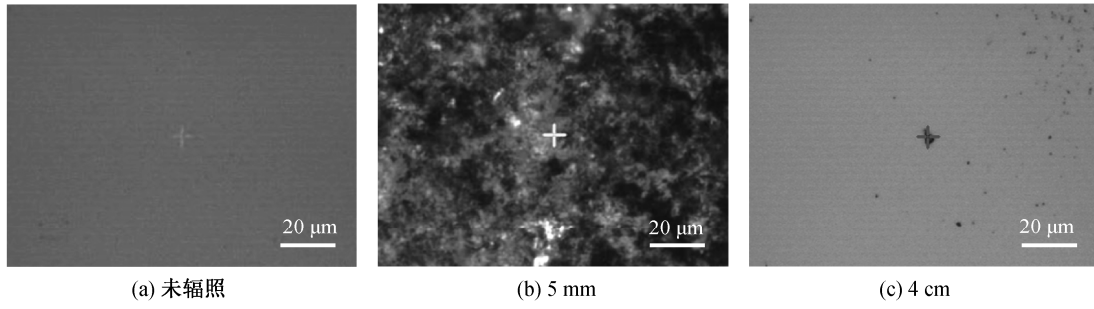


图 2 不同辐照距离下的 SiC 光镜图

Fig. 2 Optical micrographs of SiC under different irradiation distances

2.2 能谱测量

通过放置在靶后 4 cm 的辐射变色膜片(Radiochromic film, RCF)叠层诊断激光加速质子束能谱。RCF 叠层包括一片 HD-V2 RCF 和一片 EBT3 RCF, 前表面覆盖 15 μm 厚的铝膜。由于质子的大部分剂量沉积在与入射能量有关的布拉格峰位置, 我们近似地认为 RCF 检测到的是布拉格峰与灵敏层重合的单能质子束。根据蒙特卡罗程序 SRIM 的计算结果, HD-V2 RCF 和 EBT3 RCF 灵敏层探测到的质子能量分别为 1.16 和 3.2 MeV。我们假定激光加速质子束能谱满足指数分布^[14]:

$$\frac{dN}{dE} = \frac{N_0}{E} \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right), \quad (1)$$

其中, 参数 N_0 和 $k_B T$ 可根据 RCF 实验数据拟合获得, 分别为 1.77×10^{11} 和 6.19。

加速产生的质子能谱如图 3 所示。可以看出, 加速质子束为宽能谱, 根据其他诊断手段(四极透镜聚焦), 我们认为质子束能量范围为 1~4.5 MeV。质子束的电量随着质子能量的增加呈指数下降。对

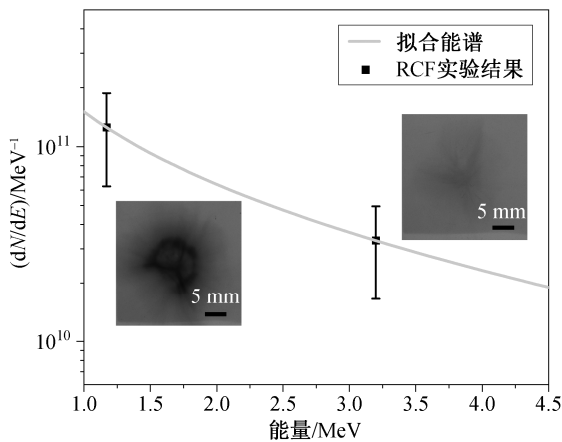


图 3 RCF 测得的激光加速质子束能谱图

Fig. 3 Energy spectrum of laser-accelerated proton beam

能谱进行积分, 可以得到激光加速质子束单发的质子束总数目为 1.85×10^{11} 个。对 RCF 的实验结果进行高斯拟合, 得出质子束斑的半径约为 0.6 cm, 可以完全覆盖一个 SiC 样品, 由此可以得出单发质子束的束流面密度约为 $1.6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 。当激光加速质子束以 1 Hz 的打靶频率辐照 300 发时, 几分钟内 SiC 样品的累积束流面密度为 $4.8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 。

2.3 SRIM 能损模拟

离子辐照在 SiC 中的损伤效应与离子的能量相关。我们利用 SRIM 程序, 对宽能谱指数下降的质子束在 SiC 材料中的能量沉积和损伤分布进行模拟。模拟过程中, 6H-SiC 的密度取 3.21 g/cm^3 。首先通过 SRIM 逐步扫描 1~4.5 MeV 单能质子的能损分布, 然后根据实验得到的激光加速质子束宽能谱, 对不同单能质子束的能损进行加权叠加。对于能量为 E_0 的单能质子, 其能损表示为 $\left[\frac{dE}{dz}(z)\right]_{E_0}$, 则总的归一化的质子能损分布随深度的变化可表示为

$$\left(\frac{dE}{dz}\right)_{\text{total}} = \sum_{(E_0)_{\min}}^{(E_0)_{\max}} \left[\frac{dE}{dz}(z)\right]_{E_0} \cdot \int_{E_0}^{E_0+\Delta E} \frac{dN}{dE} \cdot dE, \quad (2)$$

其中, $(E_0)_{\min}$ 和 $(E_0)_{\max}$ 分别为质子能量的最小值 1 MeV 和最大值 4.5 MeV。

在 $E_0 \rightarrow E_0 + \Delta E$ 的区间内, 通过对图 2 所示的能谱分段积分, 加权值可表示为该区间内质子束的份额:

$$\int_{E_0}^{E_0+\Delta E} \frac{dN}{dE} \cdot dE = \frac{N_{E_0 \rightarrow E_0+\Delta E}}{N_{\text{total}}}, \quad (3)$$

其中, $N_{\text{total}} = 1.85 \times 10^{11}$ protons。取能量间隔 $\Delta E = 0.5 \text{ MeV}$, 在 SRIM 中按指数分布的比例进行累加, 得到能损分布(图 4)。

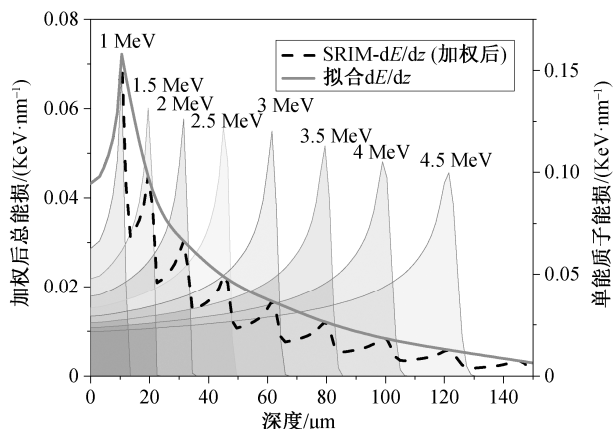


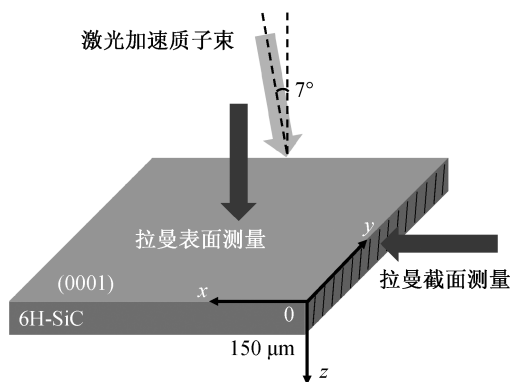
图 4 SRIM 模拟具有指数能谱的激光加速质子束能损分布
Fig. 4 SRIM simulation of the energy loss distribution of laser-accelerated proton beam with an exponential energy spectrum

可以认为, $E_0 \rightarrow 0$ 时, 对应较真实的激光加速质子束的连续能量分布。对分段累加的能损取上包络, 可以得到拟合后宽能质子在 SiC 中的能损分布, 如图 4 中实线所示。连续的能量分布显示, 激光加速质子束能够产生一步到位的拓宽布拉格峰。能损的整体趋势是, 增大到最高值后, 近似于指数级减小, 在深度约为 $10 \mu\text{m}$ 处出现最大值, 对应 1 MeV 质子在 SiC 中的射程。因此, 激光加速质子束对 SiC 样品造成的辐照损伤除存在于表面外, 更多的存在于一定的深度内。

2.4 拉曼表面及截面表征

常规的表面分析方法不足以评估辐照样品的深度损伤情况, 因此需要采用截面分析方式来观察辐照样品随深度的变化。拉曼(Raman)光谱是一种反映材料分子振动与转动的无损检测方法, 灵敏度高。质子辐照 SiC 后, 会对 Si—C 键散射峰的位置和强度产生影响, 因而拉曼光谱测量对 SiC 的辐照损伤较为敏感。目前, 已经有实验通过拉曼光谱的截面线扫描等手段, 对样品深度损伤进行表征, 发现在 SRIM 模拟的能损范围内, 都对对应着样品特征拉曼峰强度不同程度的降低^[15-16]。因此, 通过拉曼峰表征预切割和辐照样品的深度缺陷成为研究辐照引起材料损伤的有效工具。实验中采用型号为 HORIBA J-Y ARAMIS 的显微拉曼光谱仪, 分析 SiC 散射峰强度变化, 激光波长为 532 nm。测量在室温下进行。如图 5 所示, 表面 $x-y$ 面和截面 $y-z$ 面预先进行过抛光, $-z$ 轴的方向为 SiC(0001) 的方向。

由于单晶 6H-SiC 为属于空间群 C_{6v}^4 的纤锌矿



截面沿 z 轴方向进行线扫描, 深度 $0 \sim 150 \mu\text{m}$

图 5 SiC 拉曼表面和截面测量示意图

Fig. 5 Schematic diagram of SiC Raman surface and cross-section measurement

结构, 对应的拉曼振动模式在 Si-C 振动区 $600 \sim 1000 \text{ cm}^{-1}$ 的范围内主要有 A1, E1 和 E2, 相应的拉曼峰位置见表 1^[15]。

首先利用拉曼光谱对样品表面进行表征, 该测量模式下, 主要显示 3 个散射峰。为了比较不同的激光打靶发数对 SiC 表面损伤的区别, 我们进行相同距离下 150 发(对应的累积注量为 $2.4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$) 的辐照实验。对原始样品、150 发辐照样片和 300 发辐照样片进行表面的拉曼光谱面扫描, 分别取每个波数处 10 组数据的拉曼光谱强度值进行平均, 并计算标准差, 得到 3 条谱线。对 3 条谱线进行归一化后的拉曼光谱表征如图 6 所示。随着打靶发数的增加, 即质子束剂量增加, 拉曼光谱强度减小, 对应脉冲质子束辐照可能带来的 Si—C 键部分断裂。

对激光加速质子束 300 发辐照后 SiC 的 $y-z$ 平面进行拉曼光谱线扫描。根据图 4 的 SRIM 计算结果, 能量为 4.5 MeV 的质子在 SiC 中的投影射程约为 $120 \mu\text{m}$, 因此扫描深度设为 $150 \mu\text{m}$ 。扫描从 SiC 表面开始, 此处定义为 0。为了使测量更加准确, 采用分段测量的方式。前 $50 \mu\text{m}$ 以步长为 $1 \mu\text{m}$ 沿着 z

表 1 6H-SiC 的表面和截面拉曼散射峰的位置及振动模式
Table 1 Positions and vibration modes of Raman scattering peaks on the surface and cross-section of 6H-SiC

| 测量位置 | 散射峰/ cm^{-1} | 振动模式 |
|-------------|-----------------------|---------|
| 表面($x-y$) | 767 | E2 (TO) |
| | 787 | E2 (TO) |
| | 965 | A1 (LO) |
| 截面($y-z$) | 787 | A1 (TO) |
| | 797 | E1 (TO) |

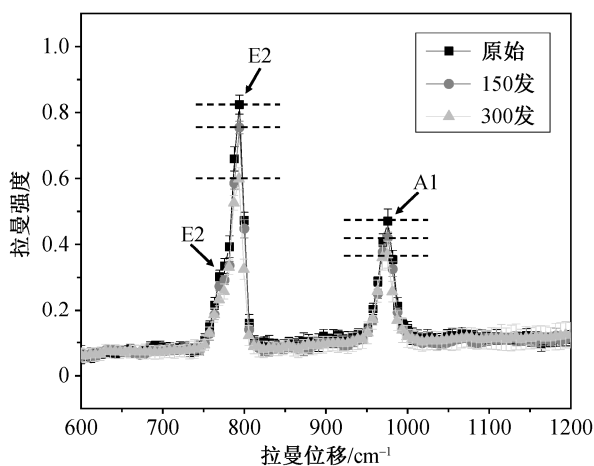


图6 原始、150发和300发辐照后SiC样品表面拉曼光谱扫描均值强度分布

Fig. 6 Raman scanning mean intensity distributions on the surface of the pristine, 150 and 300 shots irradiated SiC samples

轴进行拉曼线扫描,随后50~100 μm 和为100~150 μm 进行以步长为5 μm 进行测量。测量结果如图7所示。

此种测量方式的扫描结果主要显示振动模式为A1的主峰。靠近900 cm^{-1} 和960 cm^{-1} 的信号分别为无序SiC和表面A1振动模式的拉曼信号,出现的原因因为激光扫到材料侧面而产生信号^[15]。随着z轴深度增加,787 cm^{-1} 散射峰的拉曼光谱强度大致呈现增加后不再变化的趋势,其强度随深度的变化曲线如图8所示。

从图8可看出,强度的整体变化趋势与能损分布对应。在深度约5 μm 处出现强度最低值,相较于图4中1 MeV质子对应的10 μm 射程深度,测量结

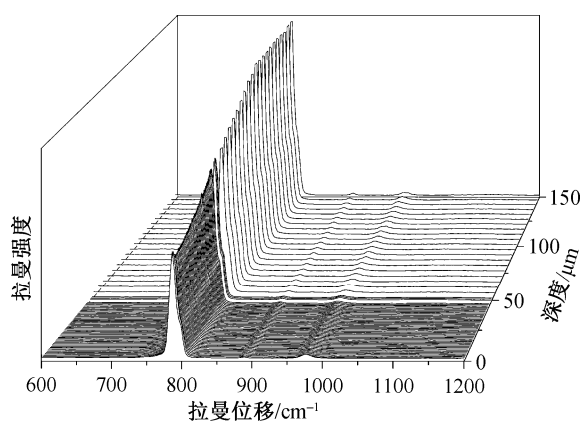


图7 300发辐照后SiC样品拉曼截面线扫描结果

Fig. 7 Raman cross-section line scan result of the SiC after 300 shots of irradiation

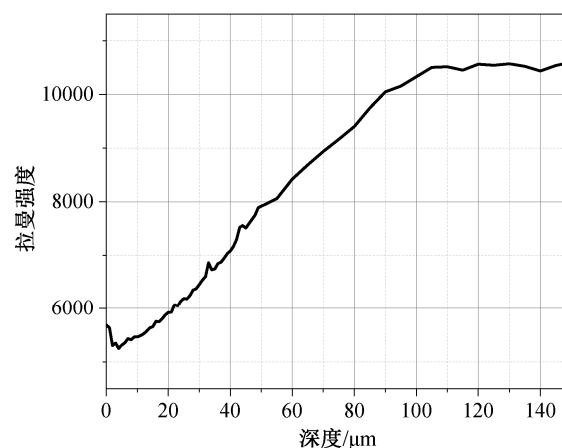


图8 300发辐照后787 cm^{-1} 主峰强度随深度的变化

Fig. 8 Intensity of the main peak at 787 cm^{-1} varies with depth after 300 shots of irradiation

果显示损伤最大处更靠近表面。这是由于激光加速质子束除含有宽能质子外,还具有X射线和一些高能离子(如C离子和O离子),这些离子未能经Al膜完全过滤掉,从而导致损伤最大值的前移。随着深度增加,拉曼光谱主峰的强度缓慢增加,在约110 μm 处保持不变,与SRIM模拟的最高能4.5 MeV质子在SiC中的射程基本上一致。

由图7和8可知,激光加速质子束的宽能谱特性可以通过实验测量的方式进行表征。SiC的拉曼散射峰强度呈现不同程度的降低,但散射峰的基本形状并未发生变化,即激光加速质子束以4 cm的距离通过Al膜过滤后,辐照SiC导致的非晶化效应并不明显。

2.5 红外光谱及SEM表征

为了从侧面反映深度损伤的结果,分别采用ThermoFisher公司的Nicolet is50和iNIO MX傅立叶变换红外光谱仪进行吸收谱和反射谱测量。原始样品和激光加速质子束300发辐照样品的红外光谱如图9所示。从图9(a)可以看出,在中红外波段,原始未辐照样品比辐照样品有更大的透过率(T),说明由于损伤,辐照样品内部有更多的光吸收中心,能吸收更多此波段的红外光。图9(b)显示,原始样品与辐照样品具有相似的反射谱图,说明样品的损伤不是以一层薄损伤层的形式存在,而是连续分布的,因而无法形成有差距的光学界面,反射谱无干涉波纹产生。与拉曼光谱扫描结果类似,激光加速质子束辐照后,虽然SiC的损伤大部分存在于一定深度内,但由于质子束的多能性,损伤为连续分布。

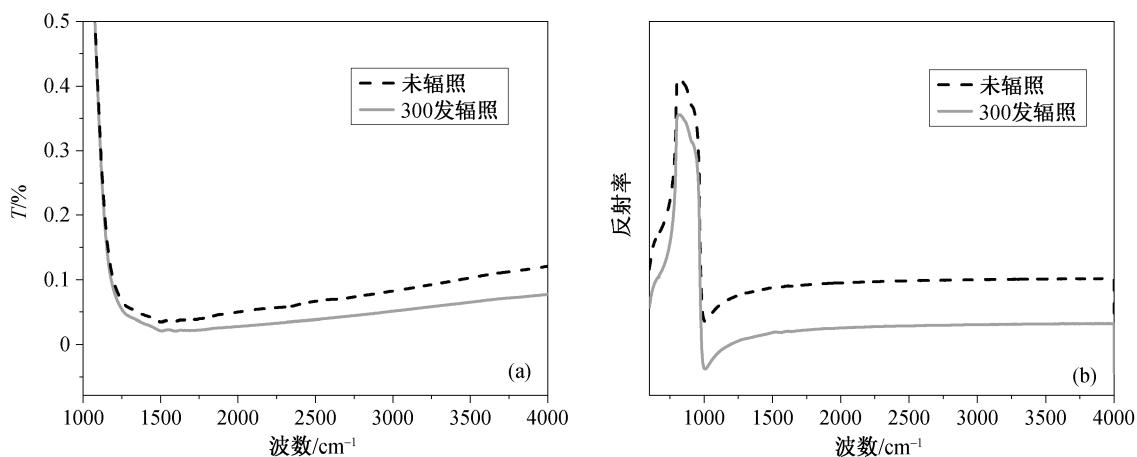


图 9 原始未辐照样品和 300 发辐照样品的红外吸收谱(a)和反射光谱(b)

Fig. 9 Infrared absorption (a) and reflectance spectra (b) of the original unirradiated sample and 300 shots irradiated SiC sample

SiC 的表面形貌采用 Hitachi S-4800 扫描电子显微镜(SEM)进行表征。图 10 为 300 发辐照后 SiC 的 SEM 图像。SiC 样品保持着较为平整的台阶状表面, 但出现裂纹(图 10 中箭头所指)。原因是激光加速质子束辐照样品时, 尽管累积的束流密度只有 10^{13} 量级, 但该距离下每发质子束的沉积时间约为 2 ns, 瞬时的注量率可达 $10^{19} \text{ cm}^{-2}/\text{s}$ 。完成 300 发的辐照, 也只需几分钟。如此大的瞬时束流密度导致 SiC 表面受热不均, 因而产生裂缝, 体现出激光加速质子束模拟苛刻辐照环境的快速和有效性。

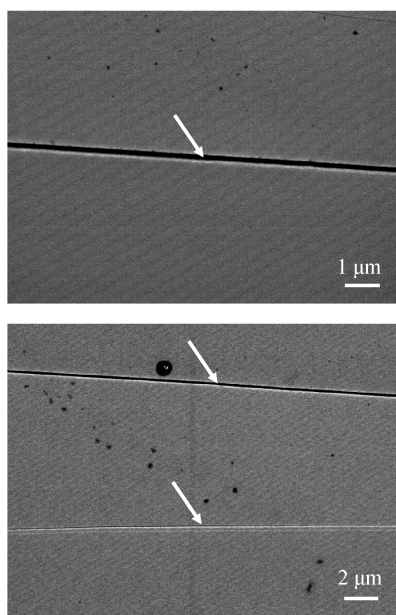


图 10 激光加速质子束 300 发辐照后 SiC 的 SEM 图像
Fig. 10 SEM images of SiC after 300 shots irradiation of laser-accelerated proton beam

3 结论

本文基于一种核材料 SiC, 研究激光加速质子束的辐照特性。在 4 cm 辐照距离下, 激光打靶 300 发后产生的质子束经过 Al 膜阻挡后, 其能谱主要为 1~4.5 MeV 且满足指数分布的宽能质子束。质子束辐照 SiC 后, 其表面和截面辐照区域拉曼光谱强度减小, 且随着深度增加, 截面拉曼主峰的强度先降低后增加, 在约 110 μm 处保持不变, 对应激光加速最低能和最高能的质子束在 SiC 中的射程, 整体趋势与 SRIM 模拟的能损分布相对应, 由此通过实验对连续宽能质子束的特点进行了表征。该种辐照条件下, SiC 并未明显非晶化, 但超快的脉冲束流使得材料表面具有相当高的瞬时束流密度。当辐照距离减小时, 有望以更大的束流密度和更短的时间对材料产生明显的辐照效应, 为代替反应堆中子辐照提供可能性。

参考文献

- [1] Passoni M, Arioli F M, Cialfi L, et al. Advanced laser-driven ion sources and their applications in materials and nuclear science. *Plasma Phys Controlled Fusion*, 2020, 62(1): 014022
- [2] Hegelich B M, Albright B J, Cobble J, et al. Laser acceleration of quasi-monoenergetic MeV ion beams. *Nature*, 2006, 439: 441-444
- [3] Borghesi M, Fuchs J B, Sergei Mackinnon A, et al. Fast ion generation by high-intensity laser irradiation of solid targets and applications. *Fusion Science and Technology*, 2006, 49(49): 412-439

- [4] Ya A, Faenov, Pikuz T, et al. Submicron ionography of nanostructures using a femtosecond-laser-driven-cluster-based source. *Appl Phys Lett*, 2009, 91: 101107
- [5] Pelka A, Gregori G, Gericke D, et al. Ultrafast melting of carbon induced by intense proton beams. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 265701
- [6] Loeffler J S, Durante M, Charged particle therapy—optimization, challenges and future directions. *Nature Reviews Clinical Oncology*, 2013, 10(7): 411–424
- [7] Dromey B, Coughlan M, Senje L, et al. Picosecond metrology of laser-driven proton bursts. *Nat Commun*, 2016, 7: 10642
- [8] Barberio M, Sciscio M, Vallieres S, et al. Laser-accelerated particle beams for stress testing of materials. *Nat Commun*, 2018, 9(1): no. 372
- [9] Barberio M, Scisciò M, Skantzakis E, et al. Carbon-based nanostructured film materials for high-intense laser-matter interaction experiments. *Adv Eng Mater*, 2019, 21(2): 1800777
- [10] Chen Xiaofei, Zhou Wei, Feng Qijie, et al. Irradiation effects in 6H-SiC induced by neutron and heavy ions: Raman spectroscopy and high-resolution XRD analysis. *J Nucl Mater*, 2016, 478: 215–221
- [11] Was G S, Jiao Z, Getto E, et al. Emulation of reactor irradiation damage using ion beams. *Scripta Mater*, 2014, 88: 33–36
- [12] Benyagoub A. Irradiation effects induced in silicon carbide by low and high energy ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2008, 266: 2766–2771
- [13] Geng Yixing, Qing Liao, Shou Yinren, et al. Generating proton beams exceeding 10 MeV using high contrast 60TW laser. *Chin Phys Lett*, 2018, 35(9): 28–32
- [14] Wagner F, Bedacht S, Bagnoud V, et al. Simultaneous observation of angularly separated laser-driven proton beams accelerated via two different mechanisms. *Physics of Plasmas*, 2015, 22(6): 063110
- [15] Wang Xu, Zhang Yanwen, Liu Shiyi, et al. Depth profiling by Raman spectroscopy of high-energy ion irradiated silicon carbide. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2014, 319: 55–61
- [16] Moll S, Sattonnay G, Thomé L, et al. Irradiation damage in $Gd_2Ti_2O_7$ single crystals: ballistic versus ionization processes. *Physical Review B*, 2011, 84(6): 064115