

文章编号: 1007- 4627(2000)03-175-04

# 快重离子辐照效应的穆斯堡尔谱学研究\*

陈晓曦, 金运范, 王志光

(中国科学院近代物理研究所, 甘肃 兰州 730000)

摘要: 概述了利用穆斯堡尔效应开展的固体材料快重离子辐照效应研究的部分结果, 并对建立在兰州重离子加速器(HIRFL)上的在束穆斯堡尔谱学研究装置及其应用作了简要的介绍.

关键词: 穆斯堡尔效应; 辐照效应; 快重离子

中图分类号: O571.33 文献标识码: A

## 1 前言

穆斯堡尔效应已在物理、化学、冶金学、地质学、材料科学、表面科学、生物学和考古学等众多学科中得到了广泛的应用, 并已发展成为一个新兴的边缘学科, 称之为穆斯堡尔谱学<sup>[1]</sup>. 穆斯堡尔谱学最显著的特点是有极高的能量分辨率和对核极强的选择性, 可灵敏地反映出原子核周围的环境因素, 如包含穆斯堡尔原子所在物质内的晶体结构、晶体完整程度、晶体点阵有序和磁有序、结晶态和非晶态、化合物的价态以及外界条件如温度、压力、磁场等引起的物质状态的变化等信息. 因此, 它是分析快重离子在含穆斯堡尔核的物质中引起效应的最灵敏的手段之一. 本文将给出利用穆斯堡尔谱研究快重离子效应的部分例证, 并对建立在兰州重离子加速器(HIRFL)上的在束穆斯堡尔谱装置及其应用进行了简述.

## 2 重离子辐照效应的穆斯堡尔谱研究

我们用 HIRFL 提供的 1 GeV Ar 离子束辐照多晶钷铁石榴石, 并借助倾斜样品 X 射线衍射仪、光吸收谱学、穆斯堡尔谱学和饱和磁化强度测量研究了非晶化现象<sup>[2]</sup>. 分析结果表明, 存在一个临界剂量  $1.0 \times 10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup> 和一个电子能损阈值  $S_e = 2.9$  MeV/ $\mu$ m. 在这两值以上晶格常数  $a$ , 光吸收系数  $\alpha$  和顺磁相分数随着电子能损值增加而增加, 而饱和磁化强度却减少. 当辐照剂量等于或大于临

界阈值时, 在电子能损  $S_e = 8.3$  MeV/ $\mu$ m 的样品上, 首次观察到多晶钷铁石榴石的完全非晶化. 从图 1 给出的穆斯堡尔谱可看出, 随着  $S_e$  的增加谱形有较大的变化, 2 和 5 峰变小, 3 和 4 峰变大. 拟合的结果表明, 当  $S_e$  从 2.9 MeV/ $\mu$ m 变到 5.8 MeV/ $\mu$ m 时, 顺磁性双峰面积则从 3.1% 变到 36.5%.

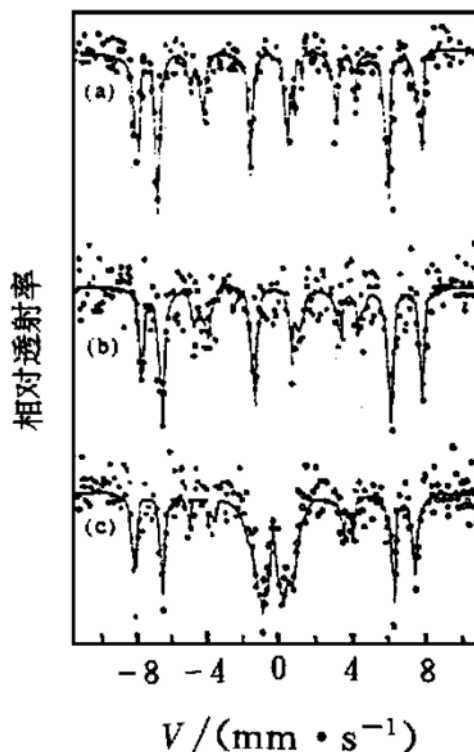


图 1 多晶钷铁石榴石的穆斯堡尔谱

(a) 未辐照, (b)  $S_e = 2.9$  MeV/ $\mu$ m, (c)  $S_e = 5.8$  MeV/ $\mu$ m, (b) 和(c) 辐照剂量均为  $5.0 \times 10^{14}$  Ar/cm<sup>2</sup>.

穆斯堡尔谱可敏感的探知原子周围的短程原子, 能确切地知道更小范围内是否是非晶态<sup>[3]</sup>. 因

\* 收稿日期: 2000 -04 -08

\* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(19875069); 中国科学院“九五”基础性研究重点项目(KJ952-S1-423)

作者简介: 陈晓曦(1941-), 男(汉族), 安徽桐城人, 副研究员, 从事凝聚态材料改性研究.

此, 尽管在所给穆斯堡尔谱谱图上未能看到逐渐变化到非晶态谱的峰线加宽, 但是由铁磁相向顺磁相的转变是由晶态向非晶态转变的先兆. 这可用离子辐照引起的应力相变效应来解释: 当高能离子辐照样品后, 产生缺陷导致轰击区有膨胀发生, 晶格常数  $a$  增加. 由于基体几何外形的限制, 产生了侧向应力, 当应力密度达到某一值时导致相变.

用 54 MeV 的  $^{12}\text{C}^{6+}$  离子辐照叠层 316L 奥氏体不锈钢至总剂量  $3.3 \times 10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>, 通过穆斯堡尔

谱和 X 射线衍射测量研究了辐照前后样品的微结构变化和相变<sup>[4]</sup>. 表 1 给出了辐照前后样品的穆斯堡尔参数, 其中样品 S0 是未辐照样, S1- S4 为依次叠层辐照样. 最大辐照损伤截面位于样品 S4 中, 其损伤水平为 2 dpa.

在表 1 中, A1 对应于铁原子位于晶胞中角顶上的情况, A2 对应于铁原子位于晶胞中面心上的情况. 两种原子具有不同的局部对称性. 下为铁素体.

表 1 316L 不锈钢穆斯堡尔参数

样品	谱线名	谱线数	相对含量/(%)	IS/(mm·s <sup>-1</sup> )	QS/(mm·s <sup>-1</sup> )	H/(kOe)
S0	A1	1	71.4	- 0.100	0.000	
	A2	2	28.6	- 0.097	0.306	
	A1	1	65.1	- 0.100	0.000	
S1	A2	2	34.9	- 0.098	0.307	
	A1	1	63.7	- 0.100	0.000	
S2	A2	2	36.3	- 0.097	0.238	
	A1	1	63.7	- 0.102	0.000	
S3	A2	2	33.4	- 0.081	0.328	
	F	6	2.9	0.227	- 0.506	332.5
	A1	1	70.8	- 0.100	0.000	
S4	A2	2	25.5	0.078	0.231	
	F	6	3.7	- 0.205	- 0.671	331.4

IS 为同质位移, QS 为四极劈裂, H 为超精细磁场.

两种微观的测试手段都得到 S4 中的  $\alpha$  铁素体含量高于 S3 中的含量. 这表明辐照损伤越强, 其相变产物越多. 再者, S0, S1 和 S2 中的相对含量的比值  $S_{A1}/(S_{A1} + S_{A2})$  逐次变小, 而  $S_{A2}/(S_{A1} + S_{A2})$  的值逐次变大, 说明在 S0, S1 和 S2 中碳的总量在逐渐增多. 在 S3 和 S4 中,  $S_{A1}/(S_{A1} + S_{A2})$  值分别为 65.62 和 73.71, 表明 S3 奥氏体中碳含量大于 S4 奥氏体中碳的含量, 这与 S3 中铁素体相含量小于 S4 中的实验结果是一致的.

在奥氏体不锈钢中, 辐照诱导相变驱动力的贡献主要来自于内部应力. 塑性形变和辐照对奥氏体不锈钢有相同的效应, 使固溶体重新分布诱导出相变. 在 S4 中, 最大损伤截面的深度范围附近产生了内应力, 导致了  $\gamma$ - $\alpha$  相变. 这些观点与在多晶钕铁石榴石<sup>[4]</sup>中应力相变效应作为相变和生成非晶态相的动力学的观点是一致的.

我们<sup>[5]</sup>也用能量为 510 MeV 的碳离子辐照 HT-9 铁素体钢至总剂量  $1.33 \times 10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup> (辐照剂量率  $2 \times 10^9$  ions/cm<sup>2</sup>·s), 用内转换穆斯堡尔谱研究了其相变和超精细磁场(H)的几率(P)分布 (见图 2).

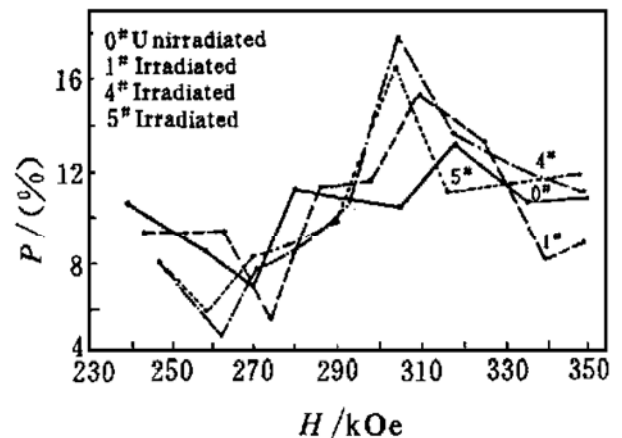


图 2 铁磁相超精细场的几率分布

图 2 中 1 号、4 号和 5 号辐照样损伤截面之比为 1: 2: 4. 发现随损伤截面的增大, 顺磁相成分增大, 并且在位于阻止区的 5 号样中最为明显. 铁磁相的谱线也有某些变化.

从图 2 看出, (1) 随着损伤截面的增大超精细磁场的分布逐渐收缩, 从 0 号到 5 号, 超精细磁场分布范围分别为 110. 6, 106. 7, 101. 1 和 99. 3 keV; (2) 随着损伤截面的增加, 几率最大对应的超精细磁场值向小的方向移动, 其对应的值分别为 317. 6, 310. 3, 304. 7 和 304. 1 keV; (3) 几率分布最大值所在的峰有变窄的趋势.

以上实验现象表明, 高能 C 离子辐照引起了 HT-9 钢成分的偏析和脱溶. 需要指出的是, 辐照引起的 Fe 原子近邻和次近邻溶质原子的种类和数量的变化, 以及溶质原子与辐照引起的缺陷之间的相互作用特点仍不完全清楚.

### 3 在束穆斯堡尔谱学

荷能离子通过靶材料, 使靶原子库仑激发, 并反冲出靶, 经过一段飞行路径后注入到宿主介质中, 在小于激发能级平均寿命的极短时间内(除去飞行时间), 反冲原子退激、发射出  $\gamma$  射线和内转换电子等, 经探测器可观察到穆斯堡尔效应. 这就是在束穆斯堡尔谱学原理(3 种方式之一)<sup>[6]</sup>.

在束穆斯堡尔谱学的特点主要是可进行剂量极低的注入( $< 10^{10}$  ions/cm<sup>2</sup>), 且注入深度较深(约 10  $\mu$ m); 能在极短的时间内观测孤立的注入原子在注入后物理过程的最初几步; 通过准弹性谱线加宽或单极和四极相互作用的弛豫来研究电子跳跃过程; 通过同质异能移和 Debye-Waller 因子来研究晶格位和电子组态<sup>[7, 8]</sup>.

为了同时观察到微观结构的演变和原子扩散, 在束穆斯堡尔谱是最好的原子量级原位实验方法之一. 它在认识快扩散的问题上(如间隙原子、跃迁矢量、跃迁频率)能发挥出较大的优势<sup>[9]</sup>. 如 <sup>57</sup>Fe 穆斯堡尔谱有一个 14. 4 keV 激发态, 其寿命  $\tau_m$  为 140 ns, 根据谱的线宽估算, 可以粗略测量到扩散系数在  $10^{-14}$ – $10^{-11}$  m<sup>2</sup>/s 的范围. 依据 <sup>57</sup>Fe 原子在晶格位中的驻留时间  $\tau$ , 在快动力学范围, 即  $\tau$  远小于  $\tau_m$  时, 其谱参数将完全平均(即运动平均), 某些谱的成分将消失到本底中, 这些成分将加宽了线宽.

在慢动力学范围,  $\tau$  可与  $\tau_m$  相比较, 虽然有谱线加宽, 但并不损失谱的成分, 这时谱将会有强烈的弛豫效应. 所以, 在库仑激发反冲注入之后, 在束穆斯堡尔谱能立即探测间隙原子的跳跃.

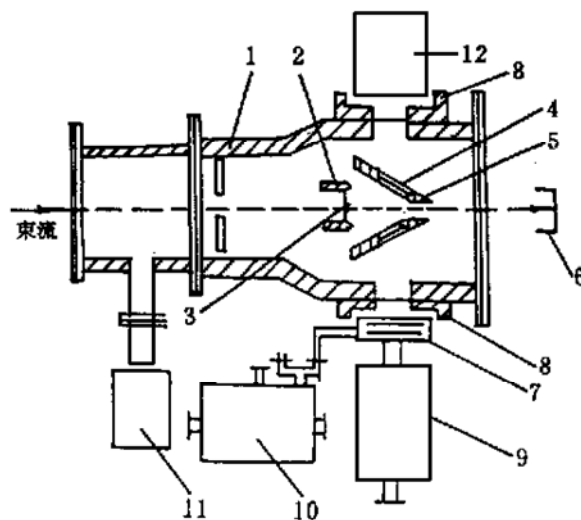


图 3 在束穆斯堡尔谱学的研究示意图装置

1 靶室, 2 靶架, 3 <sup>57</sup>Fe/Ag 靶, 4 样品, 5 样品架, 6 法拉第筒, 7 平行板雪崩计数器, 8 铅屏蔽, 9 驱动装置, 10 贮气罐, 11 真空泵, 12 气体探测器.

南京大学和近代物理研究所<sup>[10]</sup>共同研制成功了一台在束穆斯堡尔谱学实验装置(见图 3). 这套装置有以下优点: (1) 在靶中产生的本底辐射(主要是 X 射线)能有效的被屏蔽掉; (2) 被注入的介质免除了束流的直接加热, 并且介质可以处于任意温度环境下; (3) 在同一靶条件下, 注入介质可任意选取; (4) 只要屏蔽有效, 只有注入到介质中的反冲原子对谱有贡献.

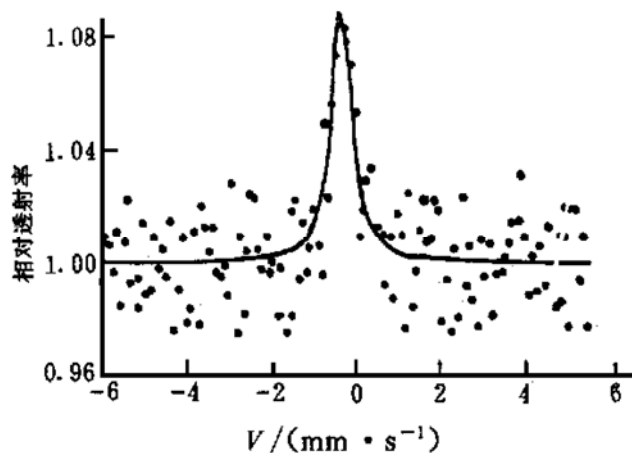


图 4 在 77K 温度下 <sup>57</sup>Fe 注入 Cu 的穆斯堡尔谱

利用这套装置, 第一次在我国 HIRFL 上开展了在束穆斯堡尔谱实验, 观察到了穆斯堡尔效应. 图 4 给出了 <sup>57</sup>Fe 注入 Cu 的穆斯堡尔谱. 从谱图可知, <sup>57</sup>Fe 只占据一种晶位,  $IS = -0.307(0.05)$

$\text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$ , 峰宽为  $(0.65 \pm 0.1) \text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$ .

## 4 结束语

从上述我们利用穆斯堡尔效应开展的部分研究

工作, 和对在束穆斯堡尔谱学及其应用的简要介绍可以看出, 穆斯堡尔效应在快重离子辐照效应研究中具有广泛的用途.

## 参 考 文 献:

- [1] 李士主编. 穆斯堡尔谱学[M]. 应用核谱学. 北京: 中国科学技术出版社, 1994, 1- 65.
- [2] Jin Yunfan, Xu Ronghui, Quan Jingming *et al.* 1 GeV Ar Ions Induced-Amorphization in Garnet [J]. Nucl Instr and Meth, 1996, B107: 227- 231.
- [3] 陈晓曦. 穆斯堡尔效应的一些应用 [J]. 核物理动态, 1991, 8: 31- 36.
- [4] Chen X X, Li C L, Jin Y F *et al.* Mössbauer Effect Study of 316L Stainless Steel Irradiated with 54 MeV  $^{12}\text{C}^{6+}$  Ions [J]. Hyperfine Interactions, 1992, 70: 931- 934.
- [5] 金运范, 肖国青, 李长林等. 快碳离子辐照 HT-9 铁素体钢的 CEMS 研究[C]. 核材料会议论文集“动力堆燃料材料的辐照和腐蚀”, 中国核学会核材料学会主编. 北京: 原子能出版社, 1989, 90- 92.
- [6] 陈晓曦. 材料结构信息的在束穆斯堡尔分析[C]. 七省市自治区核技术应用学会讨论会论文集, 兰州: 甘肃省核学会主编, 1998, 112- 113.
- [7] Sielemann R. In-beam Mössbauer Spectroscopy on Isomer Shift and Diffusion of Interstitial Fe [J]. Hyperfine Interactions, 1993, 80: 1 239- 1 255.
- [8] Keck B, Sielemann R, Yoshida Y. Iron on Substitutional and Interstitial Lattice Sites in Alkali: Metal and isomer shift systematics for interstitial iron in elemental metals [J]. Phys Rev Lett, 1993, 71: 4 178- 4 181.
- [9] Yoshida Y. Mössbauer Spectroscopy to Investigate Jump Mechanics on an Atomic Scale: Fast diffusion studies [J]. Hyperfine Interactions, 1998, 113: 183- 198.
- [10] 张鸿冰, 夏元复, 李世民等. 在束穆斯堡尔实验装置[J]. 核技术, 1996, 19: 85- 89.

# Mössbauer Spectroscopy Study of Irradiation Effects Induced by Swift Heavy Ions in Solid Materials<sup>\*</sup>

CHEN Xiao-xi, JIN Yun-fan, WANG Zhi-guang

(*Institute of Modern Physics, the Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

**Abstract:** Mössbauer spectroscopy study of irradiation effects induced by swift heavy ions in solid materials were briefly presented. Amorphization phenomenon of yttrium iron garnet irradiated by 1 GeV Ar ions has been investigated. For the first time, the nearly complete amorphous state was observed. Stainless steel 316L samples were irradiated with 54 MeV C ions and phase transformation of the samples was observed. HT-9 ferrite steel was irradiated with 510 MeV C ions. Its phase transformation and possible distribution of hyperfine magnetic field were studied. The principle and main characteristic of in-beam Mössbauer spectroscopy and the advantage of the research facility of in-beam Mössbauer spectroscopy on HIRFL are also introduced. Using the facility, we have observed Mössbauer effect on HIRFL for the first time in China.

**Key words:** Mössbauer effect; irradiation effect; swift heavy ion

\* **Foundation item:** NSFC(19875069); Key Project of the Chinese Academy of Sciences(KJ952-S1-423)