

银辐射损伤的扰动角关联研究

朱升云 左 涛 李东宏

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

采用时间微分扰动角关联方法研究了由 $^{109}\text{Ag}(\alpha, 2n)$ 反应产生的反冲核 ^{111}In 在银中产生的辐射损伤及其退火现象和治愈效应。反冲核在银中产生单空位, 实验观察到频率为76.2MHz的恒定的四极相互作用; 经673K退火, 恒定的四极相互作用消失, 作用在探针核上的只是远处缺陷产生的电场梯度分布; 经873K退火, 辐射损伤全部消失。银中辐射损伤与治愈时间关系测量表明, 经360h治愈, 探针核仍直接捕获缺陷, 但相对成分减小到1/3.5; 电场梯度分布宽度随治愈时间增长而减小, 150h后, 不随治愈时间而变。治愈主要发生在辐照后2—10d。

关键词: 扰动角关联 辐射损伤 缺陷退火 缺陷治愈

材料缺陷和辐射损伤是超精细相互作用研究的重要内容之一。具有一定能量的原子注入到材料中, 在其通过的途径上会产生一系列缺陷, 注入原子最后处于缺陷包围的晶格替代位置, 受到缺陷场的作用。如注入原子是扰动角关联探针核, 例如 $^{111}\text{In}/^{111}\text{Cd}$, 则可采用扰动角关联方法测定缺陷场和探针核之间的超精细相互作用, 获得缺陷种类和结构, 缺陷退火和缺陷治愈效应等微观信息。

对银的辐射损伤已有几家实验室作了研究, 结果很不一致。Behar和Steffen^[1]及Bernas和Thome等^[2]都在室温用 α 粒子辐照银, 但观察到完全不同的四极相互作用。前者观察到了恒定的四极相互作用, 光频率为157MHz、130MHz和115MHz; 后者未观察到恒定的四极相互作用。在他们的实验中采用的谱仪是二探头或三探头扰动角关联谱仪。为澄清银辐射损伤研究中的分歧, 我们采用了时间分辨好、探测效率高的四探头谱仪研究银的辐射损伤及其退火现象。产生的缺陷在室温下会慢慢消失的现象称为治愈效应, 本工作还研究了银辐射损伤的治愈效应。迄今, 辐射损伤治愈效应的研究甚少。

1 实验和数据处理

纯度为99.99%、厚为50 μm 的银样品在 α 辐照前经过化学处理后, 在600℃和1.3mPa的真空条件下退火2h, 使样品具有完整的立方晶格结构。 α 辐照是在本院回旋加速器上进行, 26MeV的 α 粒子轰击银, 辐照 α 粒子注量为 $0.5 \times 10^{12}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$, 辐照总剂量为 $4 \times 10^{16}/\text{cm}^2$ 。辐照在室温下进行, 辐照时银样品贴在水冷铜底衬上。辐照过程中由 $^{109}\text{Ag}(\alpha, 2n)^{111}\text{In}$ 反应产生放射性反冲核 $^{111}\text{In}/^{111}\text{Cd}$, 反冲核相继在银中产生辐射损伤。

银样品在 α 辐照和经673K及873K退火后进行扰动角关联测量, 银样品还在辐照后和经过2、6、9、10和15d冷却后在室温下作扰动角关联测量, 以研究治愈效应。扰动角关联的测量是对 ^{111}Cd 释放的、经过其 $I=5/2$ 、 $T_{1/2}=84\text{ns}$ 的中间态的172keV和247keV γ 射线进行的。测量采用四个NaI(Tl)探头的扰动角关联谱仪进行^[3], 谱仪的时间分辨为1.2ns。样品退火是在真空度为1.3mPa的氮化硼加热器中进行^[3]。在退火现象研究中, 在相应的退火温度下

进行扰动角关联测量。

扰动角关联测量同时记录四个 γ 时间符合谱 $C_{ij}(\theta, t)$ ($i=1,2; j=3,4; \theta=90^\circ, 180^\circ$)。实验测量的时间谱减去偶然符合本底后, 形成自旋转动函数 $R(t)$

$$R(t) = 2 \cdot \{ [C_{13}(180^\circ, t) \cdot C_{24}(180^\circ, t)]^{1/2} - [C_{14}(90^\circ, t) \cdot C_{23}(90^\circ, t)]^{1/2} \} / \{ [C_{13}(180^\circ, t) \cdot C_{24}(180^\circ, t)]^{1/2} + 2 \cdot [C_{14}(90^\circ, t) \cdot C_{23}(90^\circ, t)]^{1/2} \} \quad (1)$$

$R(t)$ 的理论解析式为^[4]

$$R(t) = A_2 G_2 \quad (2)$$

$$G_2(t) = \sum_{n=0}^3 S_{2n} [f \cos(n\omega_0 t) + (1-f) \cdot e^{-n\delta t}]$$

式中, A_2 是各向异性因子; $G_2(t)$ 是扰动因子; f 是直接捕获缺陷的探针核成分; $1-f$ 表示受到远处缺陷扰动的探针核的成分; ω_0 是恒定的四极相互作用的频率; δ 是扰动缺陷场的电场梯度的分布。采用方程式(2)最小二乘法拟合实验测量 $R(t)$ [式(1)], 可以得到有关的超精细相互作用参数, 如 A_2 、 f 、 ω_0 和 δ 等。由于 $A_2 \gg A_4$, 在方程式(2)中忽略了 A_4 项。数据处理中, 考虑了源吸收修正。

2 结果和讨论

图1是 α 辐照后经673K和873K退火的自旋转动函数 $R(t)$ 的实验测量和拟合谱。由图1可知, α 辐照后在室温下, 探针核直接捕获缺陷, 在 $R(t)$ 谱上可以观察到一个恒定的四极相互作用, 其频率 $\omega_0 = 76.2(8.2)$ MHz, 相对成分 $f_2 = 3.5\%$, 该四极相互作用相应的电场梯度

$V_{zz} = 4.33 \times 10^{17} \text{ V/cm}^2$ 。在室温时, 探针核还受到远处缺陷产生的电场梯度分布的作用, 引起

$R(t)$ 的阻尼。根据观察到的四极相互作用频率, 我们可以判断, α 辐照后, 反冲核在银中产生的缺陷是单空位。经673K退火后, 恒定四极相互作用消失, 探针核只受到远处缺陷产生的电场梯度分布的作用。在室温和经673K退火后, 探针核均受到电场梯度分布的作用, 该电场梯度的中心值 V_{zz} 为0。电场梯度分布的作用使 $R(t)$ 按 $e^{-n\delta t}$ 发生阻尼, 由拟合得到的 δ 可以计算出电场梯度分布的宽度 ΔV_{zz} 。 ΔV_{zz} 越大, $R(t)$ 阻尼越强; $\Delta V_{zz} = 0$ 时, $R(t)$ 无阻尼现象。 α 辐照后及经673K退火, 实验测得的 ΔV_{zz} 都为 $0.446 \times 10^{17} \text{ V/cm}^2$ 。经873K退火, 辐射损伤全部消失, 这时探针核既没有受到恒定的电场梯度的作用, 也没有受到电场梯度分布的作用, 所以 $G_2(t) \equiv 1$, 实验观察到的 $R(t)$ 不随时间变化, 因而由最小二乘法拟合所得直线的数值为各向异性因子 A_2 。

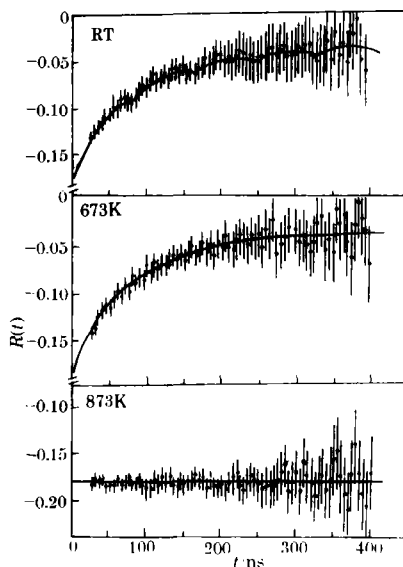


图1 自旋转动函数 $R(t)$ 随退火温度的变化
Fig.1 Spin rotation spectra $R(t)$ at various annealing temperatures

辐照后经2—15d室温治愈后的 $R(t)$ 谱见图2。图3是相对成分 f 和电场梯度分布宽度 ΔV_{zz}

随治愈时间的变化。经15d治愈仍可观察到恒定的四极相互作用,四极相互作用的频率不随治愈时间改变, $\omega_0 \approx 76.2\text{MHz}$ 。由图3可见,相对成分 f 在2d后随治愈时间而减小;10d后即不随治愈时间变化,这时的 f 值仅为前两天的 f 值的1/3.5。远处缺陷产生的电场梯度的分布宽度

ΔV_z 在2d后随治愈时间减小,从第6天起不随治愈时间而变化。图3所示的 f 和 ΔV_z 随治愈时间的变化表明,辐照后2d内没有发生可见的治愈,治愈主要发生在辐照后2—10d。10—15d没有观察到进一步的治愈。在缺陷研究过程中,缺陷治愈效应需要考虑。为防止治愈,样品最好低温保存。

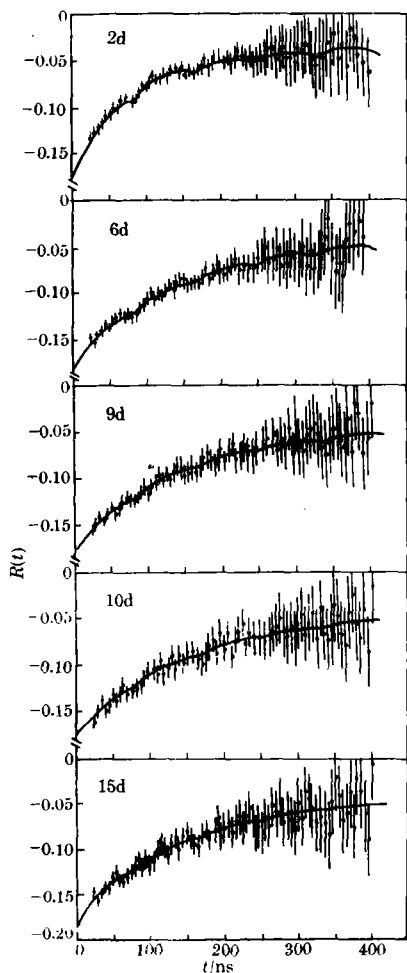


图2 自旋转动函数 $R(t)$ 随治愈时间的变化

Fig.2 Spin rotation spectra $R(t)$ as a function of healing time

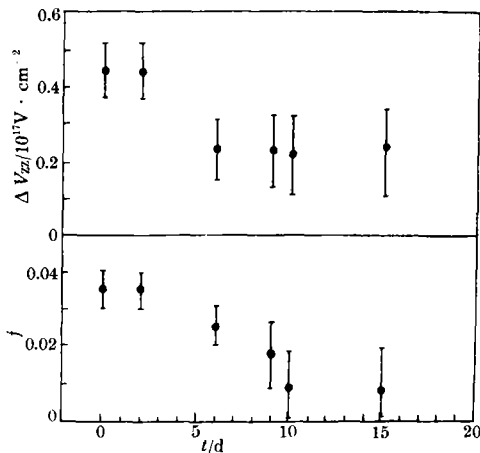


图3 相对成分 f 和电场梯度分布宽度 ΔV_z 随治愈时间的变化

Fig.3 Variation of relative fraction f and EFG distribution width ΔV_z with healing time

参考文献

- 1 Behar M, Steffen R M. Phys Rev, 1973; C7:788
- 2 Bernas H, Thomel L, Same F. Hyp Inter, 1976; 2:348
- 3 朱升云, 董明理, 左海等. 核技术, 1987; (12):4
- 4 朱升云. 物理, 1985; 14:92

(1992-05-11收到 1992-08-12修回)

Study of radiation damage in Ag by perturbed angular correlation

Zhu Shengyun Zuo Tao Li Donghong

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413)

Abstract

The time differential perturbed angular correlation method has been used to study the radiation damage in Ag and its annealing behaviour and healing effect. Monovacancies were created by ^{111}In recoils from the reaction $^{109}\text{Ag}(\alpha, 2n)^{111}\text{In}$. A unique quadrupole interaction with a sharp frequency of 76.2MHz was observed following the nuclear reaction. After annealing at 673K the unique quadrupole interaction disappeared and the probe nuclei experienced only an interaction of electric field gradient distribution which was caused by distant defects. The radiation damage was completely annealed at 873 K. The dependence of radiation damage on healing time shows that the probe nuclei still trap defects after 15 day healing but with a reduction of a factor of 3.5. The width of electric field gradient distribution decreases with increasing healing time and becomes independent of healing time after 6 day healing. Healing mainly takes place in 2 to 10 days after irradiation.

Keywords: Perturbed angular correlation Radiation damage
Defect annealing Defect healing