

# 核辐照后 YAG 的晶格离子位移

叶楚才 李贤春

1981年8月4日收到

Nd:YAG 晶体在 X 荧光辐照后, 晶格常数发生变化<sup>[1]</sup>. LiF 单晶在热中子辐照下, 衍射面的峰值强度和积分半宽度变化均敏感<sup>[2]</sup>. Si 单晶在  $\gamma$  射线辐照下出现离子位移, 其作用能主要消耗在碰撞上<sup>[3]</sup>. 红宝石激光晶体在  $\gamma$  射线辐照下, 输出能量有所提高<sup>[4]</sup>. 本文主要观察 Nd:YAG 多晶体辐照前后及恢复过程中的晶面间距的相对异常变化及其可逆性.

## 一、实验条件及结果

Nd:YAG 多晶单相材料是在 1650°C 空气环境下烧结成的. 一个样品的核反应堆的辐照条件为: 功率 3000kW, 通量  $\phi$  为  $1.9 \times 10^9$  中子/cm<sup>2</sup>s, 辐照 10 秒. 另一个样品的辐射条件为: 功率 3000kW, 通量  $\phi$  为  $4.6 \times 10^9$  中子/cm<sup>2</sup>s, 辐照 370 秒. 实验用 D-9CX 光衍射仪, CuK<sub>α</sub> 靶, LiF 单色器. 衍射角  $2\theta$  用测迥摆曲

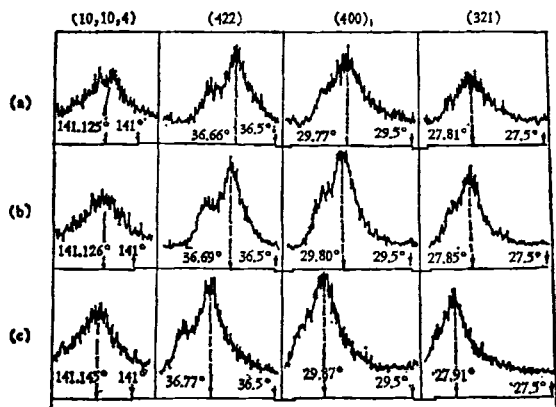


图1 三个样品不同晶面的 X 光衍射记录曲线  
(a) 辐照 370 秒后存放 30 天的样品; (b) 辐照 10 秒存放 30 天的样品; (c) 未经过辐照的样品

线重心法来确定. 每次均以未辐照样品为标准, 分别测量 (321), (400), (422) 和 (10, 10, 4) 等晶面的衍射角. 高角度时, 测量误差小于  $0.005^\circ$ , 低角度时, 测量误差小于  $0.01^\circ$ .

从图 1 可看出, 经过辐照后存放 30 天的两个样品, 若干个不同晶面的衍射角  $2\theta$  发生位移, 低角度的  $\Delta 2\theta$  远较高角度的大, 相对变化量远在分析误差之外.

从图 2 可看出, 辐照后存放 10 多天, 晶格均缩小, 20—30 天左右均增大, 40 天后近似恢复到原始值.

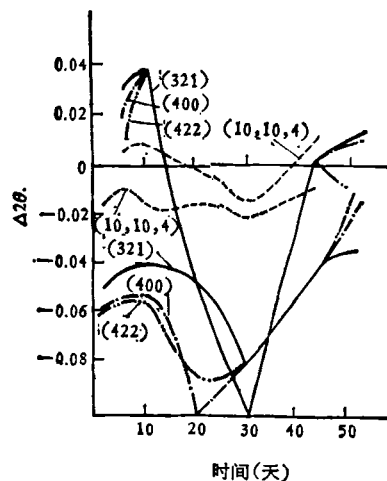


图2 辐照后各晶面的  $\Delta 2\theta$  与放置天数的关系 ( $\Delta 2\theta$  为 0 的水平线代表未经辐照的样品;  $\Delta 2\theta$  为正值的曲线代表经 370 秒辐照的样品;  $\Delta 2\theta$  为负值的曲线代表经 10 秒辐照的样品)

## 二、讨论

$Y_3Al_5O_{12}$  单胞中包括八个子晶格, 每个子晶格中心是 a 位 (八面体中心), 每个  $O^{2-}$  都与

两个c位(十二面体)、一个d位(四面体)、一个a位的多面体相接。选与(010)距离为1.248 Å<sup>[5]</sup>的这个O<sup>-2</sup>为参考点,再根据文献[6]可知d位的正负离子距离为1.76 Å,晶格常数a为12.00 Å,由图3关系可得

$$\frac{1}{4}a = \sqrt{b^2 - y^2} + \sqrt{c^2 - y^2},$$

式中  $c = 1.76 \text{ \AA}$ ,  $y = 1.248 \text{ \AA}$ 。在图3中再利用  $g = 1.94 \text{ \AA}$ , 便可算出  $Y_{c_1}^{+3}-O^{-2}$  的距离为  $2.236 \text{ \AA}$ ,  $Y_{c_2}^{+3}-O^{-2}$  的距离为  $2.156 \text{ \AA}$  (用  $b$  表示)。O<sup>-2</sup> 坐标位置为  $X = -0.793 \text{ \AA}$ ,  $Y = 1.248 \text{ \AA}$ ,  $Z = -0.258 \text{ \AA}$ 。

当晶格均匀收缩时, 则  $Y_{c_1}^{+3}-O^{-2}$ ,  $Al_a^{+3}-O^{-2}$ ,  $Y_{c_2}^{+3}-Al_a^{+3}$  之间的距离都是按比例收缩,

式中  $b' = \sqrt{(y + y\Delta a_h/a)^2 + (\sqrt{b^2 - y^2} + \sqrt{b^2 - y^2} \cdot \Delta a_h/a)^2}$ ,

$$\cos C' = \frac{b'^2 + \left(\frac{a}{4} + \frac{a}{4} \cdot \frac{\Delta a_1}{a}\right)^2 - \left[ \frac{(a/8 - f) + \frac{(a/8 - f) \cdot \Delta a_h}{a}}{\cos \left[ \tan^{-1} \frac{y + y \cdot \Delta a_h/a}{(a/8 - f) + (a/8 - f)\Delta a_h/a} \right]} \right]^2}{2 \cdot b' \cdot (a/4 + a/4 \cdot \Delta a_1/a)}.$$

由上面两式算出在此条件下的最大位移量分别为  $\Delta f_T = 0.0001 \text{ \AA}$ ,  $\Delta y_N = 0.002 \text{ \AA}$ 。在非均匀收缩时, 如图3所示, 以  $Al_d^{+3}$ ,  $Y_{c_1}^{+3}$  连线与  $Al_a^{+3}$  所在位置的水平线交点为参考点, 当周围八面体  $Al^{+3}$  向这参考点收缩时, O<sup>-2</sup> 不但向位

相对夹角不变。但当  $Y_{c_1}^{+3}-Al_a^{+3}$  及  $Al_d^{+3}-Al_a^{+3}$  之间的收缩比  $Y_{c_1}^{+3}-O^{-2}$  和  $Al_d^{+3}-O^{-2}$  之间的收缩相对量大得多时, 则 O<sup>-2</sup> 向 Y, -Z 方向位移。

由图2中的辐照370秒样品各晶面的  $\Delta 2\theta$  变化曲线, 可以看出辐照后放置10天时晶格收缩有一个最大值。由于异常收缩关系, 此时低指数面  $\Delta 2\theta \approx 0.04^\circ$ , 而高指数面  $\Delta 2\theta \approx 0.008^\circ$ 。前者算出晶格常数改变量  $\Delta a_1 = 0.156 \text{ \AA}$ , 后者为  $\Delta a_h = 0.0003 \text{ \AA}$ , 代入下列两式, 可分别算出 O<sup>-2</sup> 向下 ( $\Delta f_T$ ) 向外 ( $\Delta y_N$ ) 位移量。

$$\Delta f_T = b' \cos C' - \left[ f + \frac{1}{8} (a - \Delta a_1) \right],$$

$$\Delta y_N = b' \sin C' - y,$$

于此参考点基面收缩, 反而附加向外向下移动, 压到八面体上突破八面体各 O<sup>-2</sup> 之间的斥力, 使 O<sup>-2</sup> 与其中心  $Al^{+3}$  靠得更近, 出现局部特殊收缩区, 而基面上的十二面体、四面体就近似

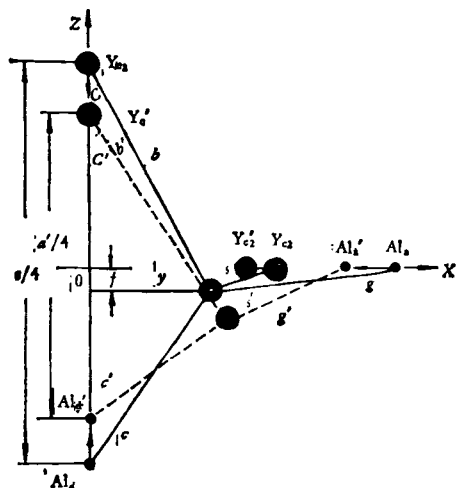


图3 子晶格中非均匀收缩时部分离子移动在坐标YZ面上的投影示意图(当  $b \rightarrow b'$ ,  $c \rightarrow c'$ ,  $1/4 a \rightarrow 1/4 a'$  时, O<sup>-2</sup> 则向 Y, -Z 坐标方向移动)

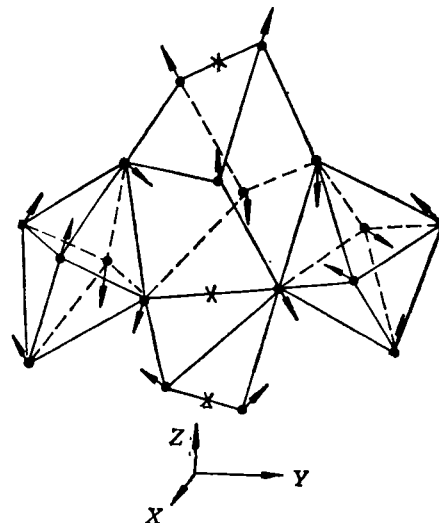


图4 各多面体外围的 O<sup>-2</sup> 转动示意图(箭头方向表示晶格非均匀收缩时的运动方向; 一\*—表示两个 O<sup>-2</sup> 之间的最短边长)

(下转第446页)