

Mágneses orientációváltozás nagyenergiájú nehézion besugárzás hatására lágmágneses FINEMET ötvözetben

Tudományos Diákköri Dolgozat

KUDOR MÁTYÁS

Fizika Bsc, 3. évfolyam

Témavezető:

Prof. Dr. Kuzmann Ernő



Eötvös Loránd Tudományegyetem

Analitikai Kémia Tanszék

Magkémiai Laboratórium

Budapest 2021

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés.....	2
2. Irodalmi áttekintés.....	3
2.1. A FINEMET ötvözetek főbb jellemzői	3
2.2. FINEMET vizsgálata Mössbauer-spektroszkópia segítségével	7
2.3. FINEMET feszültségtérben és mágneses térben történő hőkezelése	10
2.4. A nagyenergiájú ion besugárzás hatása szilárd anyagokon.....	12
2.4.1. A nagyenergiájú ion besugárzás hatása FINEMET ötvözeteken	13
3. Célkitűzés	14
4. Kísérleti eljárás.....	15
4.1. Mintaelőállítás	15
4.1.1. A FINEMET szalagok előállítása.....	15
4.1.2. Nagyenergiájú nehézion besugárzás	17
4.2. Vizsgálati módszerek	19
4.2.1. Mössbauer-spektroszkópia	19
4.2.1.1. A Mössbauer-effektus	19
4.2.1.2. A Mössbauer-spektrum	21
4.2.1.3. Hiperfinom kölcsönhatások.....	23
4.2.1.4. Relatív vonalterületek a Mössbauer-spektrumban	27
4.2.1.5. Mössbauer-mérési körülmények	29
5. Eredmények és értékelésük	30
5.1. Mössbauer-vizsgálatok eredményei	30
5.1.1. Nagyenergiájú nehézionokkal történő kétoldali besugárzás hatása FINEMET szalagokon	30
5.1.2. Egyoldalról történő nagyenergiájú nehézion besugárzás hatásának a Mössbauer-vizsgálata extrém nagy permeabilitású, hőkezelt FINEMET ötvözetekben	35
6. Összefoglalás.....	40
7. Irodalmi hivatkozások	41
8. Köszönetnyilvánítás	44

1. Bevezetés

Napjainkban a lágymágneses anyagok (Fiorillo és mtsai, 2016) a széles körben használt elektronikai és elektrotechnikai eszközökben kulcsfontosságú szerepet játszanak. Alkalmazási területük rendkívül széleskörű. Transzformátorokban, jeladóknak, jelfogókban, jelátalakítókban, érzékelő kapcsolókban és elektronikus erősítőkben nyerne többek között alkalmazást, így például, felhasználást nyerne az autók és repülőgépek nélkülözhetetlen alkatrészeként is (Koba és mtsai, 1999, Chizhik és mtsai, 2017, Ohmori és mtsai, 2019, FINEMET Catalog, 2020).

Fontosságukat az olyan kiváló lágymágneses tulajdonságaiknak köszönhetik, amelyek a nagy fajlagos elektromos ellenállás, a kis koercitív erő, a kis hiszterézis veszteség és alacsony frekvencián fellépő nagy permeabilitás. A lágymágneses anyagok fejlesztésének célja a permeabilitás növelése és a hiszterézis veszteség csökkentése.

A modern lágymágneses anyagok egyik fajtáját a Fe-Si alapú amorf ötvözetek részleges kristályosításával előállított nanokristályos ötvözetek képezik (Henry és mtsai, 1999). Az egyik legismertebb ilyen típusú anyag a $\text{Fe}_{73.5}\text{Si}_{13.5}\text{Nb}_3\text{B}_9\text{Cu}_1$ összetételű, FINEMET fantázia nevű ötvözet, amelyet Yoshizawa és munkatársai (Yoshizawa és mtsai, 1988) állítottak elő először 1988-ban a Hitachi cégnél. Ezt az ötvözetet olvadékalapotból történő gyorshűtéssel állítják elő amorf ötvözet szalagok formájában, majd utólagos hőkezelést alkalmaznak $540\text{--}550\text{ }^\circ\text{C}$ hőmérsékleten, aminek következtében nanokristályos kiválások keletkeznek az amorf mátrixban, miáltal a technológiai alkalmazások szempontjából kiváló lágymágneses tulajdonságokat érnek el. A FINEMET ötvözet nagy permeabilitással ($\sim 10^5$ 1 kHz-nél), kis magnetostrikcióval ($\sim 2 \times 10^{-6}$), nagy mágnesezettséggel ($\sim 1.2\text{ T}$), kis koercitív erővel ($\sim 1\text{ A/m}$) és kis hiszterézis veszteséggel ($< 5\text{ J/m}^3$) rendelkezik. Korábbi kutatásokban összefüggést mutattak ki a mágneses permeabilitás és a mágneses anizotrópia között (Kuzmann és mtsai, 2013). A mágneses anizotrópia viszont nagyenergiájú nehézion besugárzással módosítható (Kuzmann és mtsai, 2012), ami által a hőkezelt FINEMET lágymágneses tulajdonságainak kedvezőbbé tétele várható.

A ^{57}Fe Mössbauer-spektroszkópia (Gonser, 1975) kiváló módszer arra, hogy mágneses szalagokban előforduló amorf és nanokristályos fázisokat vizsgáljunk (Kuzmann és mtsai, 2012), valamint, hogy a mágnesezettség átlagos orientációját meghatározzuk és ezáltal a mágneses anizotrópiáról információt szerezzünk.

Jelen munkám során, a nagyenergiájú nehézion besugárzás hatását tanulmányoztam FINEMET típusú lágy mágneses ötvözeteken. Besugárzott, illetve besugárzatlan hőkezelt FINEMET szalagokon végeztem a mágneses anizotrópiára vonatkozó vizsgálatokat Mössbauer-spektroszkópia segítségével.

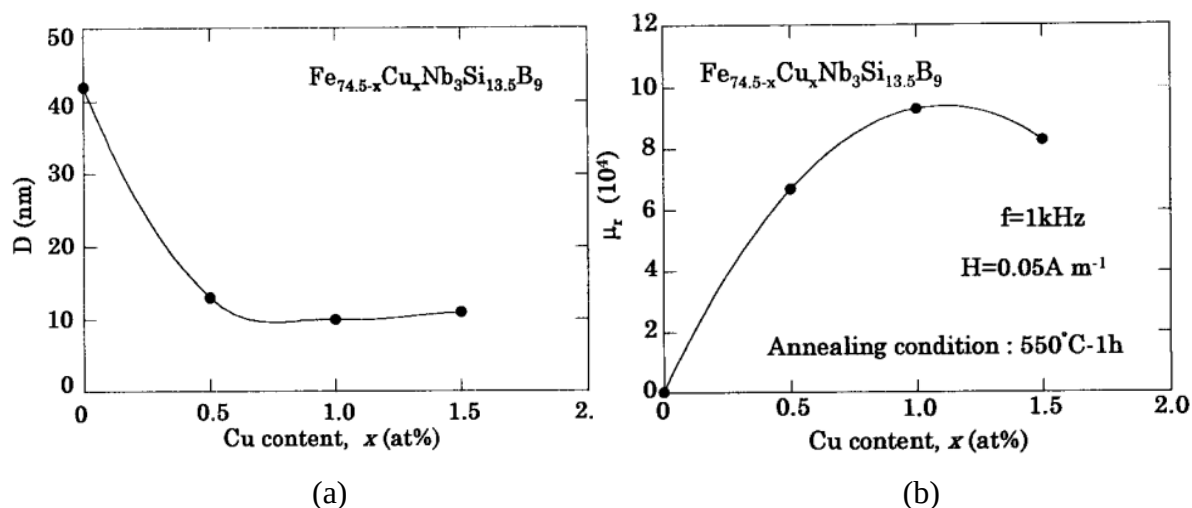
2. Irodalmi áttekintés

2.1. A FINEMET ötvözetek főbb jellemzői

A Finemet anyagcsalád fejlődése 1988-ban vette kezdetét, amikor Yoshizawa, Oguma és Yamauchi a japán Hitachi cégnél előállított rendkívül jó lágymágneses tulajdonságokkal rendelkező nanokristályos és amorf szerkezetű szalagokat (Yoshizawa és mtsai, 1988). A mintát $\text{Fe}_{73.5}\text{Si}_{13.5}\text{Nb}_3\text{B}_9\text{Cu}_1$ ötvözetként állították elő, amelyhez hasonló összetételű ötvözeteken azóta is széles körben végeznek vizsgálatokat. A FINEMET mintákat úgy állították elő, hogy az olvadék állapotban lévő ötvözetet nagy sebességgel forgó, szobahőmérsékletű réz hengerre lőtték. Az így előállított szalag amorf szerkezetű és még nem rendelkezett optimális lágymágneses tulajdonságokkal. Ennek oka, hogy a forgó korongra lőtt minta, $\sim 10^5$ K/s-os hűlési sebességgel lehül, amelynek következtében a szalag szerkezetében nincs idő hosszútávú rend kialakulására. Évekkel később megállapították, hogy a mágneses tulajdonságok jelentős javításához, az amorf ötvözetet 1 órán át tartó, 550°C hőmérsékleten hőkezelní kell. A hőkezelt FINEMET szalag nagyon kedvező mágneses tulajdonságra tesz szert, ami az eljárás során kivált Fe-Si nanokrisztallitok megjelenésének tudható be (Hono és mtsai, 1991). A kiválást követően amorf és 10-20 nm átmérőjű, nanokristályos fázis elegye jön létre, ahol a Fe-Si nanokrisztallitok összetett köbös rácsot alkotnak. Az amorf fázis az anyag 20-40% tette ki.

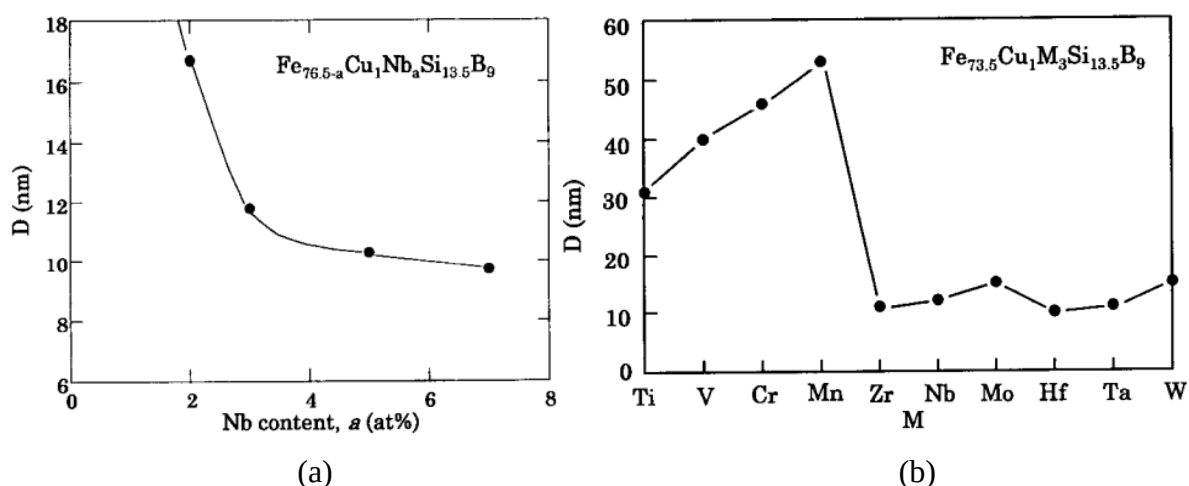
A lágymágneses tulajdonságok kialakulásában kulcsfontosságú szerepet játszik a szemcseméret csökkenése, ami magyarázható a véletlenszerű anizotrópia modellel (Herzer, 1989), amikor is a mágneses kicserélődési hossz nagyobb, mint a nano-tartományban lévő szemcseméret. Yoshizawa és munkatársai azt találták, hogy az utóbbi tulajdonsághoz az ötvözőelem fajtája mellett hozzájárul annak a koncentrációja is. A Fe-Si fázis kristályosodása heterogén csíráképződéssel kezdődik, amely folyamatban a réz, mint csíráképző vesz részt (Yoshizawa, 1999). Megállapították, hogy a tércentrált köbös Fe-Si kristályok szemcsemérete a réztartalom hatására jelentősen változik. Az 1. ábra (a) grafikonjáról leolvashatjuk, hogy a Fe-Si fázis szemcseméretének csökkenése 0,6% réztartalomig jelentős, majd 1% réztartalom körül hozzávetőlegesen 10 nm szemcseméretű Fe-Si fázis képződése állandósul. Az 1. ábra (b)

grafikonja a relatív permeabilitásának réz koncentrációtól való függését mutatja be. Azt találták, hogy a relatív permeabilitás 1% Cu tartalom közelében éri el maximumát. Az 1. ábrán bemutatottak összevetése alapján arra következtettek, hogy a rézkoncentráció megváltoztatásával a FINEMET ötvözet lágmágneses tulajdonságai optimalizálhatók.



1. ábra. A réz tartalom hatása a Fe-Si fázis átlagos szemcseméretére FINEMET ötvözetben (a), FINEMET ötvözet relatív permeabilitása a réz koncentráció függvényében (b) (Yoshizawa, 1999)

Yoshizawa és munkatársai (Yoshizawa, 1999) azt is megállapították, hogy a nióbiumnak, amely a gyorshűtéssel kialakuló amorf fázis képződéséhez is hozzájárulhat, az elsődleges szerepe a kiváló Fe-Si fázis szemcsenövekedést gátló hatásában érvényesül (2. ábra (a) grafikon).



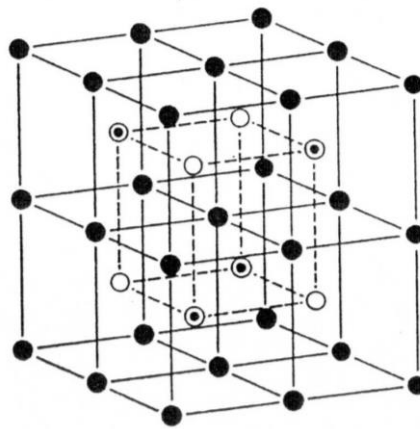
2. ábra. FINEMET ötvözet Fe-Si fázis átlagos szemcsemérete a nióbium koncentráció függvényében (a), FINEMET ötvözet Fe-Si fázis átlagos szemcseméretének a függése az ötvözőelemektől (b) (Yoshizawa, 1999)

A szemcseméret változtatása céljából a nióbium helyettesíthető más atomokkal is (Yoshizawa, 1999). Így, például Mo, Ta, W, Zr, Hf ötvözők esetében a szemcseméret

10-20 nm-re csökkenthető. A szemcseméret függését az ötvöző elemektől a 2. ábra (b) grafikonja mutatja.

A korai irodalomban található vizsgálatok döntő része a Yoshizawa és munkatársai által (Yoshizawa és mtsai, 1988) elsőként előállított $\text{Fe}_{73.5}\text{Si}_{13.5}\text{Nb}_3\text{B}_9\text{Cu}_1$ összetételű, hagyományos, FINEMET ötvözetre irányult.

Zhang és munkatársai megfigyelték (Zhang és mtsai, 1996), hogy a hőkezelési hőmérséklet növekedésével a Fe-Si fázis kristályszerkezete változik, és 490-590 °C intervallumban történő hőkezelés után a DO_3 struktúra a jellemző. A DO_3 rácsban a vas és szilícium atomok helyzetét a 3. ábra mutatja.



3. ábra. A DO_3 rács szerkezete

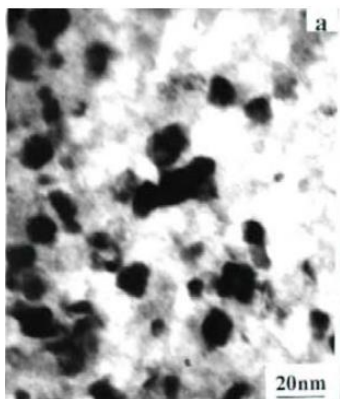
3. ábra jelmagyarázata:

- Tömör gömb: „A” alrácsban elhelyezkedő vas atom, amely 4, 5, illetve 6 vas atom szomszédával rendelkezik.
- Üres gömb: „B” alrácsban elhelyezkedő vas atom, amely 7, illetve 8 vas atom szomszédával rendelkezik.
- ⊙ Félig töltött gömb: „D” rácspont, „B” alrácsban elhelyezkedő vas atom, amely 7, illetve 8 vas atom szomszédával rendelkezik.

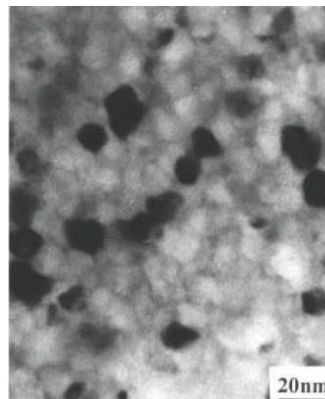
Hampel és munkatársai a hagyományos összetételű FINEMET ötvözet 550 °C 1 órán át tartó hőkezelését találták a mágneses tulajdonságok szempontjából optimálisnak (Hampel és mtsai, 1992).

A transzmissziós elektronmikroszkópos vizsgálatokkal az 500 °C-on 1 órán át hőkezelt FINEMET szalagokon DO_3 struktúrák kialakulását figyelték meg (Cziráki és mtsai, 2004). Ezek átlagosan 10 nm-es szemcsemérettel rendelkeztek és tércentrált Fe-Si fázisban helyezkedtek el (4a ábra). A kristályos hányad itt 30% volt. A méréseket magasabb

hőmérsékleten (540 °C-n) hőkezelt mintákon is elvégezve, az eredmények azt mutatták, hogy nem történt lényeges szemcse méret növekedés az anyagban (4b ábra).

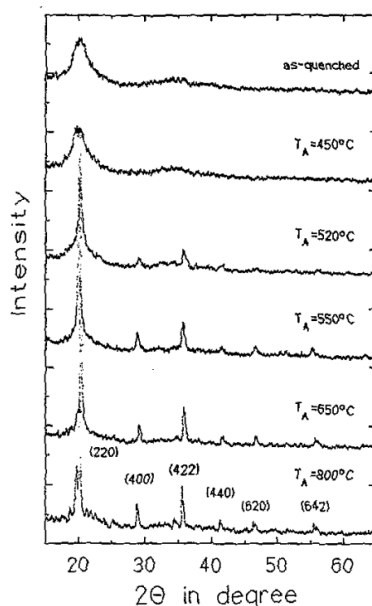


4a ábra. 1 órán át 500°C-on hőkezelt FINEMET minta TEM képe (Cziráki és mtsai, 2004)



4b ábra. 1 órán át 540°C-on hőkezelt FINEMET minta TEM képe (Cziráki és mtsai, 2004)

Hampel és munkatársai (Hampel és mtsai, 1992) röntgendiffraktometria segítségével is vizsgálták a hőkezeletlen és 450 és 800 °C tartományban 1 órán át hőkezelt FINEMET ötvözeteket. Néhány idevágó röntgendiffraktogram az 5. ábrán látható. A hőkezeletlen mintákon az amorf fázisra jellemző széles csúcsokból álló diffraktogramot láttak. A hőkezelt és hőkezeletlen minták diffraktogramjait összehasonlítva jól követhető a vonalak keskenyedése, ami a kristályosodási folyamatot jelzi (5. ábra). A diffraktogramok analízise alapján megállapították, hogy 520 és 550 °C tartományban DO₃ szerkezetű Fe-Si nanofázis kristályosodása történik.



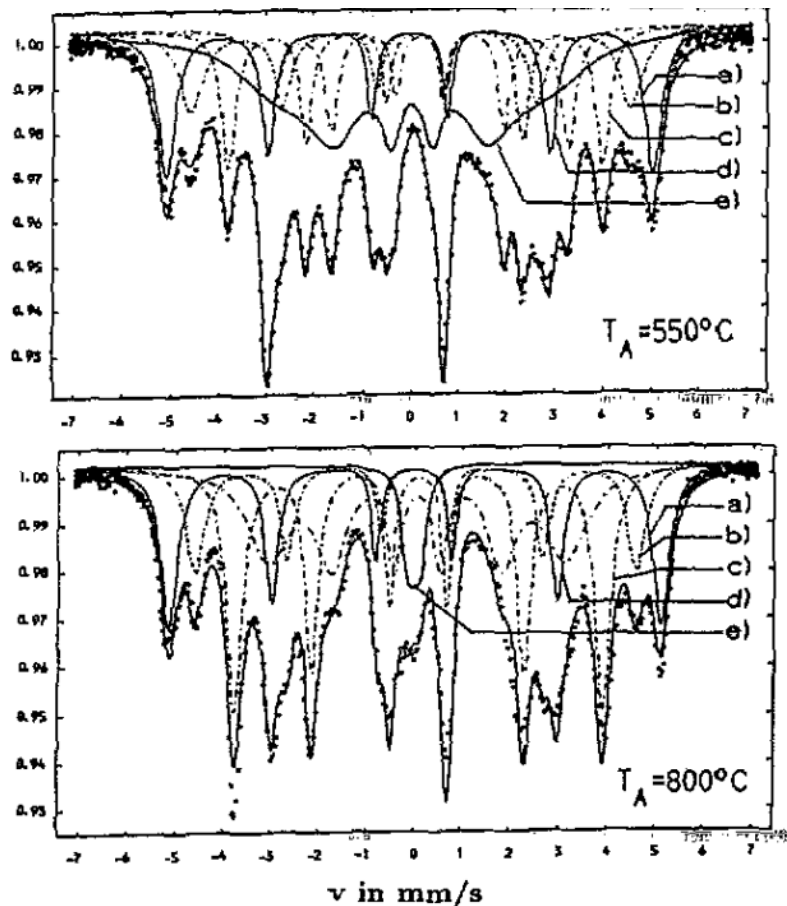
5. ábra. A hőkezeletlen és 1 órán át különböző hőmérsékleteken hőkezelt és FINEMET minták XRD diffraktogramjai ($\lambda_{\text{MoK}\alpha} = 0.071069 \text{ nm}$) (Hampel és mtsai, 1992)

2.2. FINEMET vizsgálata Mössbauer-spektroszkópia segítségével

A Mössbauer-spektroszkópia az elektronok és atommag közötti hiperfinom kölcsönhatások detektálására az egyik legalkalmasabb módszer. Ezáltal az amorf anyagok rövidtávú kémiai és topológiai rendezettségének, valamint a kiváló kristályos fázisok vizsgálatára és a mágneses anizotrópia meghatározására is alkalmas (Gonser, 1975). A FINEMET szerkezeti tulajdonságainak vizsgálatában a Mössbauer-spektroszkópia annak felfedezése óta játszik fontos szerepet.

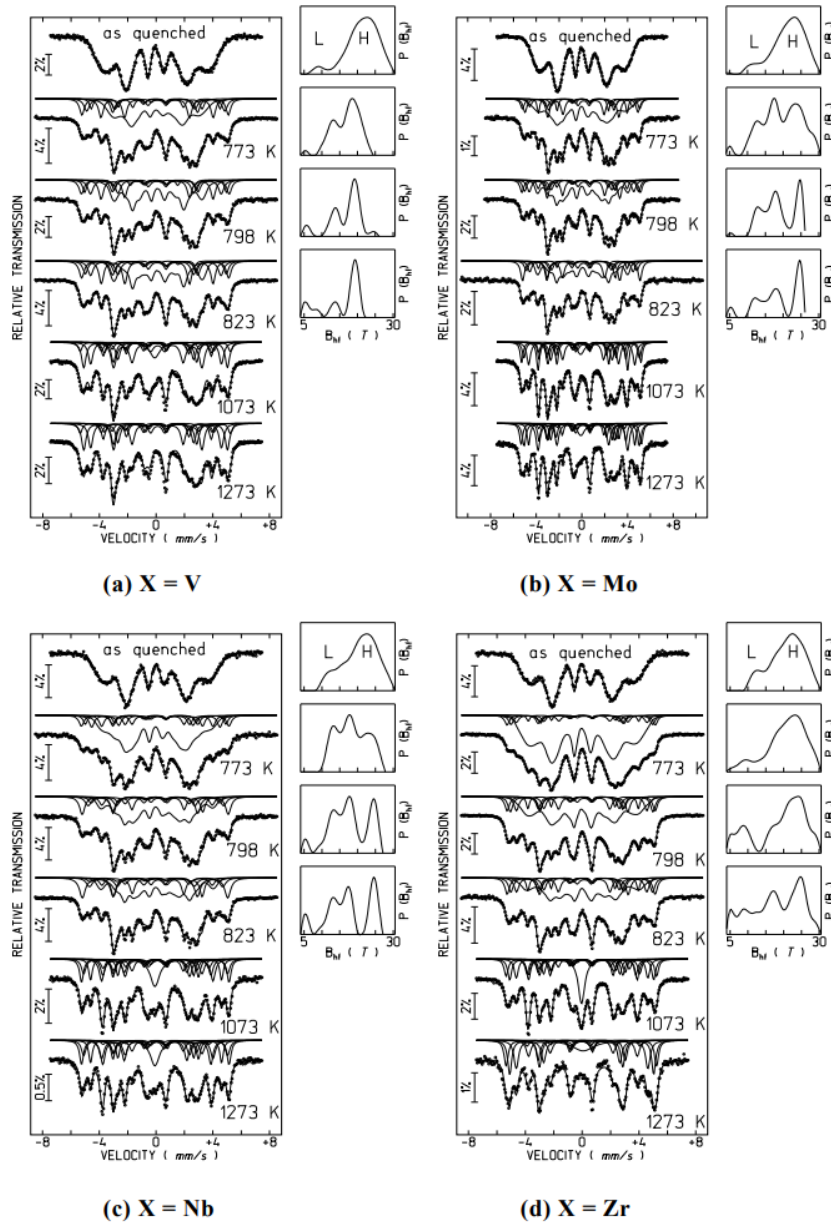
Kataoka és munkatársai (Kataoka és mtsai, 1989) elsők között mérték FINEMET összetétel-tartományba eső gyorshűtéssel előállított és hőkezelt ötvözetek Mössbauer-spektrumait. A gyorshűtött minták szobahőmérsékleti Mössbauer-spektrumai széles vonalakkal rendelkező, mágneses felhasadást mutató, az amorf állapotra tipikusan jellemző spektrumokat mutattak. A hőkezelt minták spektrumai a hőkezelési hőmérséklet növekedésével fokozatosan átalakultak, tagoltá váltak, és 550 °C –on 1 óra hőkezelés után már legalább 4 különböző belső mágneses térrel rendelkező szextettekre voltak bonthatók. Hasonló Mössbauer-spektrumokat mért többek között (Jiang és mtsai., 1991) (Zemčík és mtsai., 1992), (Hampel és mtsai, 1992), (Gupta és mtsai, 1994) is.

Hampel és munkatársai (Hampel és mtsai, 1992) valamint Borrego és munkatársai (Borrego és mtsai, 2000) a hagyományos FINEMET Mössbauer-vizsgálatai során kapott Mössbauer-alspektrumokat és a hozzájuk tartozó paramétereket elemezték. Munkájuk során összefüggést találtak az Fe-mikrokörnyezetek és alspektrumok között, amely segítségével a kristályos fázisra vonatkozóan megállapítható volt, hogy a teljes spektrumot alkotó alspektrumok száma közvetlen kapcsolatban áll a DO₃ rácsban található Fe atomok legközelebbi szomszédjainak számával. A spektrumot öt alspektrum használatával értékelték ki, amelyek közül négy tartozott a DO₃ struktúrában elhelyezkedő Fe-Si fázishoz és egy az amorf ferromágneses komponenshez (6. ábra). A tapasztalatuk alapján az amorf-kristályos hányad azonos hőkezelési idő mellett, a hőkezelés hőmérsékletét változtatva módosítható. A mérési eredmények azt mutatták, hogy a legjobb lágmágneses tulajdonságok eléréséhez a mintákat 1 órán át 550°C-on kell hőkezelni. Ezen a hőkezelési hőmérsékleten az amorf fázis körülbelül az anyag 40%-át képezheti.



6. ábra. 550 °C –n (felül) és 800 °C-n (alul) hőkezelt FINEMET szobahőmérsékleti Mössbauer-spektrumainak felbontása (Hampel és mtsai, 1992). Az a, b, c és d szextett komponensek a Fe-Si nanokiválások DO_3 rácsában különböző mikrokozonyezetekben lévő vasatomokhoz tartoznak. Az e komponens az amorf fázishoz tartozik, amit 550 °C –n hőkezelt állapotban (felül) szextett, amíg 800 °C-n hőkezelt állapotban (alul) dublett reprezentál.

A lágymágneses tulajdonságok javítása érdekében Borrego és munkatársai (Borrego és mtsai, 1997) az ideális összetételtől való eltérés hatását vizsgálták FINEMET anyagokon. Kísérleteikben a mintához Mo, V, Nb, Zr, hozzáadásával vizsgálták, hogy ezen összetevők milyen hatást gyakorolnak a Mössbauer-spektrum vonalintenzitás változására. A méréseket különböző hőkezelési hőmérsékleteken is elvégezték. A kapott Mössbauer-spektrumokat a 7. ábra foglalja össze. A hőkezelési hőmérséklet növelésével az amorf fázis csökkenését tapasztalták, ami Zr ötvöző esetében mutatott legkisebb változást, ami arra utal, hogy Zr hozzáadásával stabilizálódik az ötvözet.



7. ábra. 1 órán át, különböző hőmérsékleten hőkezelt $\text{Fe}_{73.5}\text{Si}_{13.5}\text{B}_9\text{Cu}_1\text{Nb}_1\text{X}_2$ összetételű, különböző szemcsenövekedést gátló ötvözők hozzáadásával kapott FINEMET minták Mössbauer-spektrumai és ezek hatása a hiperfinom téreloszlásra (Borrego és mtsai, 1997)

Rodríguez és munkatársai (Rodríguez és mtsai, 2004) a különböző elemekkel ötvözött FINEMET kristályosodásának kinetikus folyamataira vonatkozóan végeztek vizsgálatokat ^{57}Fe Mössbauer-spektroszkópia segítségével különböző hőmérsékleteken. Amikor a mintát az amorf fázis Curie hőmérséklete felett hőkezelték, akkor a paramágneses amorf (dublett) és Fe-Si kiválásból álló kristályos (szextettekkel jellemzett) fázis jól elkülöníthető volt egymástól a Mössbauer-spektrumokban.

Miglierini (Miglierini, 1994) Mössbauer-spektroszkópia segítségével vizsgálta FINEMET 550 °C-n történő izotermikus hőkezelés idejének hatását 0-16 óra közötti

tartományban. Azt találta, hogy az izotermikus hőkezelés idejének növekedésével nemcsak kristályos kiválás történik, hanem a maradék amorf fázis jelentős változásokon megy keresztül.

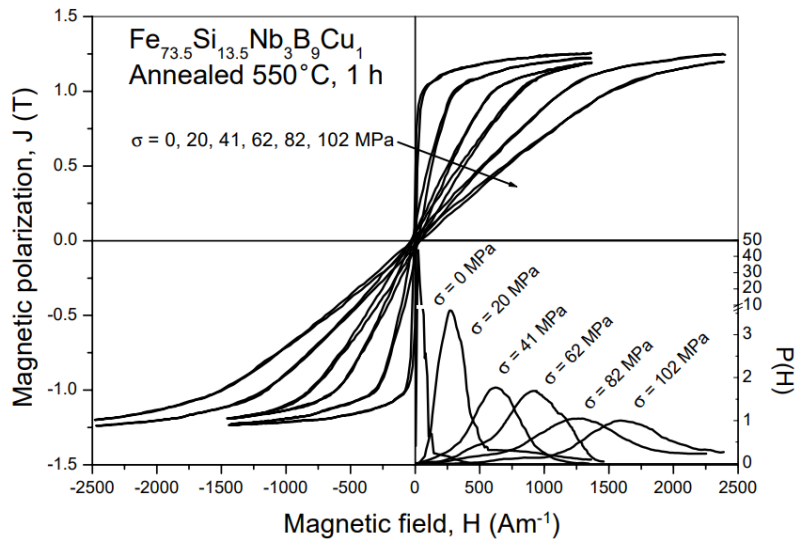
Nagy felbontású Mössbauer-spektroszkópia segítségével (Oshtakh és mtsai, 2016) sikerült megkülönböztetni azokat a vas-mikrokörnyezeteket is hőkezelt FINEMET Fe-Si DO₃ szerkezetű nanokristályaiban, amelyek a hagyományos Mössbauer-mérésekkel nem mutathatók ki.

2.3. FINEMET feszültségtérben és mágneses térben történő hőkezelése

Azt tapasztalták, hogy a FINEMET ötvözet mágneses térben (Yoshizawa és Yamauchi, 1989) vagy feszültségtérben (Herzer, 1994) (Hofmann és Kronmüller, 1995) történő hőkezelése során a mágneses anizotrópia megváltozik, ami a FINEMET technikai alkalmazásai szempontjából is fontos.

Yoshizawa és Yamauchi (Yoshizawa és mtsai, 1989) Fe_{73,5}Si_{13,5}B₉Cu₁Nb₃ ötvözetben vizsgálták a mágnesezési görbe változását a minta síkjával párhuzamos és arra merőleges mágneses térben történő hőkezelés során. A longitudinális mágneses tér hatására nagyobb remanencia alakult ki, míg transzverzális mágneses tér alkalmazásakor a mágnesezési görbe ellaposodott. Az egyes mintákat különböző mágneses terekbe helyezve a relatív permeabilitások eltérő megváltozást mutattak. Alacsonyabb frekvencia tartományban 150kHz-ig a mágneses tér nélkül hőkezelt mintának volt a legmagasabb a relatív permeabilitása, viszont 150 kHz-től a transzverzális mágneses térben hőkezelt szalag rendelkezett a legnagyobb relatív permeabilitással, így technikai alkalmazások szempontjából ez a hőkezelési mód a kedvezőbb.

Kane és munkatársai (Kane és mtsai, 2009) Mössbauer-spektroszkópia segítségével vizsgálta a feszültségteret hőkezelés hatását hőkezelt FINEMET spin orientációjára vonatkozóan. Hofmann és Kronmüller (Hofmann és Kronmüller, 1995) feszültség indukált mágneses anizotrópiát mutattak ki nanokristályos FINEMET, valamint Varga és munkatársai (Varga és mtsai, 2003) nanokristályos FINEMET és NANOPERM ötvözetekben.



8.ábra. Hagymányos összetételű, 1 órán át 550°C fokon, különböző feszültségtérben hőkezelt FINEMET szalag hiszterézis görbéi jobb alsó sarokban az anizotróp téreloszlással (Varga és mtsai, 2003)

Az 8. ábrán 550°C hőmérsékleten, 1 órán át hőkezelt FINEMET szalag hiszterézis görbéje látható különböző mértékű feszültségtérben hőkezelések mellett. Az ábrán megfigyelhetjük, hogy feszültségtér nélküli hőkezelés során a mágneses térerősség értékével egy élesen felfutó görbét látunk, míg egyre nagyobb feszültségek alkalmazásával ez a görbe ellaposodik. Az indukált transzverzális mágneses anizotrópiát a feszültségtérben és feszültségtérmentes mágnesezési görbék területkülönbségeiből és az anizotrópia eloszlásának átlagértékéből határozták meg. Az alkalmazott feszültség növelésével a mágneses anizotrópia nőtt, ami a Mössbauer-spektrumokban a mágneses felhasadást mutató komponensek második és ötödik vonalának (az első és hatodik vonalaihoz képesti) relatív területének a csökkenésében is tükröződött. Esetükben a feszültségtérben indukált mágneses anizotrópiát két nagyságrenddel nagyobbak találták, mint a mágneses térben hőkezelt minták esetében. A mágnesezési görbére kapott eredmények korábbi munkákhoz (Herzer, 1994) hasonlóan adódtak.

Kuzmann és munkatársai (Kuzmann és mtsai, 2013) Mössbauer-mérések segítségével korrelációt mutattak ki különböző mágneses térben vagy feszültségtérben hőkezelt FINEMET ötvözetekben a mágneses nyomaték irányának a minta normálisával bezárt szöge és a permeabilitás között. Kuzmann és munkatársai (Kuzmann és mtsai 2012) ezt a Mössbauer-eljárást alkalmazták a nagyenergiájú nehézion besugárzás hatására létrejövő mágneses anizotrópia megváltozás kimutatására is (bővebben 2.5 pont alatt tárgyalva).

2.4. A nagyenergiájú ion besugárzás hatása szilárd anyagokon

A nagy energiájú (100-1000MeV) nehézion besugárzás szilárd testekre gyakorolt hatása háromféle elemi kölcsönhatásból tevődik össze (Stichleutner, 2009). Az előidézett makroszkopikus változást okozó kölcsönhatások a sugárzás és atomok között fellépő rugalmas ütközések, a magreakciók és az elektrongerjesztés. Ha egy E energiával rendelkező részecske dx utat tesz meg a besugárzott mintában, akkor az előbb említett kölcsönhatások miatt fékeződik, aminek során dE energiát veszít. Ennek megfelelően a részecskére az anyag által okozott erő három részre bontható (Seitz és Koehler, 1956):

$$-\frac{dE}{dx} = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_n + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_r \quad (1)$$

Az (1) egyenlet jobb oldalának első tagja a céltárgy atomjai és a besugárzás során használt, adott energiával rendelkező ion ütközésekor létrejövő fékezési erőt jellemzi. A fékezési erőt az alábbi képlet adja meg:

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_n = n_0 \int_0^{T_m} T \frac{d\sigma(T)}{dT} dT \quad (2)$$

ahol n_0 a minta atomsűrűsége, T_m az atomnak átadható maximális energia, T az ion által átadott energia, $\frac{d\sigma}{dT}$ a szórási differenciális hatáskeresztmetszet. Az egyenlet első tagja megadja, hogy E energiával rendelkező részecske, mekkora valószínűséggel ad át T energiát az atomnak. Ha ez az energia $T_d \sim 25$ eV érték fölött van, az atom elhagyja az eredeti helyét és Frankel-hibát hoz létre. Abban az esetben, ha ez az energia elég nagy, akkor a helyét elhagyó atom képes más atomokat is kimozdítani a pozíciójukból. A folyamat az energiaszint egy bizonyos érték alá csökkenéséig folytatódik.

Az egyenlet második tagja az elektronfékezési erőként ismert. Ez a hatás elektronok közötti rugalmatlan ütközésekre vonatkozik. Ez a domináns kölcsönhatás a nagy energiájú besugárzásnál. A hatás míg eléri a mintára vonatkoztatott maximum értékét az energia gyökével arányosan nő, majd csökkenni kezd. Nagy sebességű ionok esetén a jelenséget a Bethe-képlettel lehet jellemezni:

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{4\pi n_0 Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v^2} \ln \left(2 \frac{m_e v^2}{I} \right) \quad (3)$$

ahol I az átlagos ionizációs energia m_e az elektron tömege. Az elektronok kölcsönhatása miatt gerjesztődés is létrejöhet, ami jelentős mennyiségű hő megjelenésével jár. Ez helyenként a rácsot is megolvaszthatja, aminek következtében termikus spike-ok jönnek létre. A kialakult termikus spike-ok a fémek jó hővezetése miatt hamar lehűlnek, rácshibákat hagyva maguk után, amely amorfizációt okozhat az anyagban.

Az egyenlet harmadik tagja a rácsatomok és besugárzott nehézionok közötti rugalmatlan ütközéseket írja le, amely fékezési sugárzáshoz és magreakcióhoz vezet, azonban ez az energia csak egy küszöbértéket elérve számottevő.

2.4.1. A nagyenergiájú ion besugárzás hatása FINEMET ötvözeteken

Rizza és munkatársai (Rizza és mtsai, 2004) 5 GeV energiájú Pb ionokkal sugároztak be FINEMET mintát. A Pb ionok pályájuk mentén radiális nyomáshullámokat keltettek az anyagban. Ezek a mechanikai feszültségek destabilizálták az amorf szerkezetet és nanokristályosodást indukáltak. Dubey és munkatársai (Dubey és mtsai, 2007) Mössbauer-spektroszkópia és MOKE-spektrométer segítségével vizsgálták az ötvözet 120 MeV Ag és 350 MeV Au ionok besugárzása következtében végbemenő reakciókat. Kutatásuk során azt tapasztalták, hogy a besugárzás következtében belső feszültség relaxáció megy végbe és ennek következtében a kezdetben jelenlévő mágneses anizotrópia és a koercitiv tér fokozatosan lecsökken, így a FINEMET mágneses tulajdonságai szabályozhatók, módosíthatók. A mágneses anizotrópia nagyenergiájú nehézionokkal történő módosításának előnye a feszültségterés vagy mágneses terés hőkezeléssel szemben, hogy a mágneses anizotrópia nagysága akár néhány mikronos felbontásban módosítható.

Kuzmann és munkatársai (Kuzmann és mtsai, 2012) különböző típusú nagyenergiájú nehézionokkal történt besugárzás hatását vizsgálták $\text{Fe}_{73,5}\text{Si}_{13,5}\text{Nb}_3\text{B}_9\text{Cu}_1$ FINEMET szalagokon Mössbauer-spektroszkópia és röntgendiffraktometria segítségével. A kísérletekben a nagyenergiájú nehézion besugárzás által a kémiai rövidtávú rendre, mágneses anizotrópiára és ezáltal a mágneses tulajdonságokra gyakorolt hatását vizsgálták. A besugárzott szalagokat gyorsshűtéssel állították elő és egy órán át 550°C-on hőkezelték, különböző 0-124 MPa terhelés mellett. A besugárzás az oroszországi dubnai EAI Flerov-laboratóriumának U400 ciklotronjában történt 10^{-3} Pa nyomáson, szobahőmérsékleten, 246 MeV energiájú Kr ionokkal 10^{13} - 10^{14} ion/cm² dózist, 470 MeV Xe ionokkal 10^{13} ion/cm² dózist és 720 MeV energiájú Bi ionokkal, $5 \cdot 10^{11}$ ion/cm² dózist alkalmazva. A vizsgálatok során azt találták, hogy a nagyenergiájú nehézion besugárzás hatására a mágneses anizotrópia jelentősen csökkent

még hozzá a különböző típusú nehézion besugárzástól függően eltérő mértékben. Az anizotrópia csökkenésére a Mössbauer-spektrumokból kapott $A_{2,5}$ és $A_{3,4}$ vonalak intenzitás arányának csökkenéséből következtettek. Eredményeiket a következő táblázatok foglalják össze:

1. táblázat. Nagyenergiájú nehézion besugárzások hatása a mágnesezettség irányára hőkezeletlen amorf FINEMET mintákon (Kuzmann és mtsai, 2012)

Sample	State	Ion/energy	Ratio $A_{2,5}/A_{3,4}$	Angle θ
basic1	amorphous	Non-irradiated	4.0	90
basic1	amorphous	Bi/720 MeV	2.42	60.25
basic1	amorphous	Xe/470 MeV	1.35	45.26

2. táblázat. Nagyenergiájú nehézion besugárzások hatása a mágnesezettség irányára feszültségtérben hőkezelt FINEMET mintákon (Kuzmann és mtsai, 2012)

20 MPa	Non-irradiated	Bi, 720 MeV 5×10^{11} ion/cm ²	Xe, 470 MeV 10^{13} ion/cm ²	Kr, 246 MeV 10^{14} ion/cm ²
$A_{2,5}/A_{3,4}$	3.13	1.83	1.17	1.18
angle, θ	69.5	52.4	42.3	42.5
124 MPa	Non-irradiated	Bi	Xe	Kr
$A_{2,5}/A_{3,4}$	2.7	1.5	1.16	1.17
angle, θ	63.8	47.6	42.2	42.3

A táblázatok alapján a besugárzás előtt és után megmért mintákon kapott eredményeket összehasonlítva látszik, hogy a mágneses orientáció a nagyenergiájú nehézion besugárzás hatására megváltozik, amely szerint a besugárzás hatására a mágneses tér átlagos iránya elfordul a minta síkjától. Ez a hatás a besugárzással bevitt hibák mennyiségével arányos és nagy mennyiségű hiba körüli feszültségtérnek a spinorientációt megváltoztató hatásának tudható be.

3. Célkitűzés

Diákköri munkám célja az volt, hogy a $\text{Fe}_{73,5}\text{Si}_{13,5}\text{Nb}_3\text{B}_9\text{Cu}_1$ összetételű hőkezelt FINEMET típusú nanokristályos anyagokban a nagyenergiájú nehézion besugárzás hatására kialakuló mágneses anizotrópia változását tanulmányozzam a ^{57}Fe Mössbauer-spektroszkópia segítségével. A besugárzás 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal szobahőmérsékleten 10^{13} ion/cm² dózissal történt. Elsősorban, azt kívántam vizsgálni, hogy a nagyenergiájú nehézion besugárzás milyen hatást gyakorol a hőkezelt FINEMET szalagok mágnesezettségének az orientációjára, különös tekintettel olyan mintákon, amelyek előzetesen már részlegesen besugárzásra kerültek. Az előzetesen besugárzott mintákban, ugyanis, a 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal történt besugárzás esetén a Xe ionok körülbelül a mintavastagság feléig

képesek behatolni, ezért a minták ellentétes oldaláról történő második besugárzással tudjuk elérni, hogy a teljes mintatérfogatot be legyen sugározva. Elsődlegesen arra a kérdésre kívántam válaszolni, hogy milyen mágneses anizotrópia változások következnek be FINEMET ötvözetekben a második, teljes térfogatot érintő nagyenergiájú nehézion besugárzás után a besugárzatlan és az első, az egyik oldalról történt besugárzás utáni állapotokhoz képest. Ezen kívül, egy kimagaslóan nagy permeabilitású ($\mu=190000$) FINEMET szalag gyorsabban lehűlő, matt oldal felőli besugárzás hatására bekövetkező mágneses anizotrópia változását kívántam összehasonlítani ugyanazon ötvözet korábbi ellentétes, lassabban hűlő, fényes oldal felőli besugárzásnál történő eddig ismeretlen hatásával. A besugárzott és besugárzatlan mintákat elsősorban transzmissziós Mössbauer-mérésekkel kívántam vizsgálni.

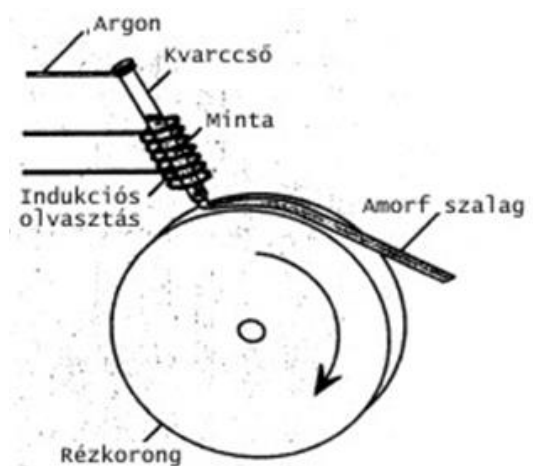
4. Kísérleti eljárás

4.1. Mintaelőállítás

4.1.1. A FINEMET szalagok előállítása

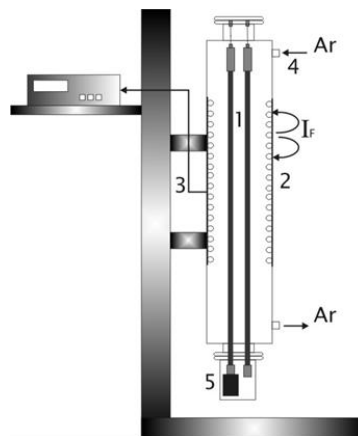
A mintákat gyorsshütéssel állították elő, amelynek leírása a következő:

A $\text{Fe}_{73.5}\text{Si}_{13.5}\text{Nb}_3\text{B}_9\text{Cu}_1$ összetételű anyagot indukciós kemencében megolvasztják. Az anyag 12 menetes tekercssel körülvett néhány μm átmérőjű kvarccsőben van elhelyezve. A kvarccső légmentesen zárt. A tekercs rézcsőből van hajlítva, aminek a belsejében hűtővíz kering. Ez megakadályozza a réztekercs túlzott felhevülését, míg az ötvözet megolvad a benne létrejövő nagy örvényáramok hatására. A tekercs nagyfrekvencián (350 kHz) működik. A hevítés közbeni oxidáció elkerülése végett a kvarccsőbe argon gázt vezetnek, amely később túlnyomás elérésével a minta kilövését segíti. Az így készült olvadékot a túlnyomás segítségével forgó rézkorongra lövik rá, ahol nagy hűlési sebességgel (10^5 K/s) szalag formájában megszilárdul (9. ábra). A rézkoronggal történő érintkezésnek köszönhetően a hűlési sebesség a szalag korong felől kialakult, matt oldalán nagyobb, mint a levegő felől létrejövő fényes oldalon. A szükséges hűlési hőmérséklet és fizikai paraméterek (hossz, vastagság stb.) a korong forgási sebesség, a kilövésnél alkalmazott túlnyomás és olvadék hőmérsékletének függvényében megválasztható. A szalag méretei, 4-20 mm szélesség és 10-20 μm vastagság között változtak a kapilláris méretének és a henger forgási sebességének függvényében.



9. ábra. Az amorf szalag előállítása [Mozolai, 2020]

Az ily módon elkészített szalagokat argon atmoszférában 1 órán át 550°C-on csőkályhában mágneses- vagy feszültségtérben hőkezelték. (10.ábra). A hőkezelés folyamán az amorf szalagok nanokristályos szerkezetűvé alakultak. Az alkalmazott eljárással egyszerre kettő szalag hőkezelhető: egy terhelés nélküli referencia és egy feszültség- vagy mágnesestérben kezelt. A terhelt állapotot a mintára akasztott ismert tömegű súlyok segítségével lehet elérni. A minta keresztmetszetének meghatározásával a mechanikai feszültség meghatározható. Az így elkészített szalagok különböző relatív permeabilitással rendelkeznek. A kutatásban szereplő minták paraméterei a 3. táblázatban láthatók.



10. ábra. Amorf minták hőkezelése csőkályhában [Mozolai, 2020]

3. táblázat. A kutatásban szereplő minták paraméterei

Minta neve	Finemet 021	Finemet 022	Finemet 023
Permeabilitás	2000	8000	190000
Hőkezelési idő/hőmérséklet	1h /550°C	1h /550°C	1h /550°C

4.1.2. Nagyenergiájú nehézion besugárzás

A FINEMET szalagok nagyenergiájú nehéz ionokkal történő besugárzása a dubnai EAI Flerov Magreakciók Laboratóriumának IC-100 ciklotronjával történt. A mintákat 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal sugározták be szobahőmérsékleten 10^{13} ion/cm² dózissal. A minták kb. 2 cm hosszú, 1 cm széles és 22 mikrométer vastag szalagok formájában lettek réz target-tartóra karbonszalag ragasztóval rögzítve. A target-tartó hőmérséklete a besugárzás alatt nem haladta meg a 25 °C-t.

A 4. táblázat mutatja a minták besugárzási körülményeit.

4.táblázat. A felhasznált minták besugárzási paraméterei.

Minta neve	Minta eredeti neve	Besugárzás	Besugárzási oldal	Besugárzott ion és dózis	Besugárzási hőmérséklet
Finemet CK021	Finemet 021	Korábban, egyszeres, egyoldalról	fényes	$^{132}\text{Xe}^{28+}$, 10^{13} ion/cm ²	Szobahőmérséklet
Finemet CK022	Finemet 022	Korábban, egyszeres, egyoldalról	fényes		
Finemet CK3221	Finemet 021	Újólág, másodszori besugárzás, teljesen átsugárzott	matt		
Finemet CK3231	Finemet 022	Újólág, másodszori besugárzás, teljesen átsugárzott	matt		
Finemet CK223	Finemet 023	Korábban, egyszeres, egyoldalról	fényes		
Finemet CK3241	Finemet 023	Új, egyszeres, egyoldalról	matt		

4.2. Vizsgálati módszerek

4.2.1. Mössbauer-spektroszkópia

A fejezet tárgyalása a következő könyvek alapján történik: (Kuzmann és mtsai, 2011), (Vértes és mtsai, 1979), (Gonser, 1975), (Greenwood, 1971), (Dickson és Berry, 1986), (Cranshaw és mtsai, 1985)

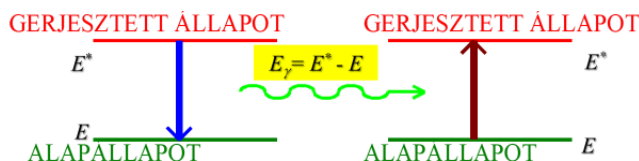
4.2.1.1. A Mössbauer-effektus

A Mössbauer-spektroszkópia alapját a Mössbauer-effektus képezi, amelyet Rudolf Mössbauer, német fizikus fedezett fel 1958-ban (Mössbauer, 1958). Maga a jelenség a gamma fotonok visszalökődésmentes magrezonancia-abszorpciója. A Mössbauer-effektus esetén a forrás atommagja nagyon rövid élettartamú (10^{-10} s) véges gerjesztett állapotából alapállapotba való izomér átmenetkor egy gamma fotont bocsájt ki, amelynek energiája az alap és gerjesztett állapot közötti energiakülönbségnek megfelelő. A foton az abszorbens atommagjában rezonanciaszerűen elnyelődik és ennek megfelelően az atommag gerjesztett állapotba kerül. A magrezonancia abszorpció kísérleti kimutatása azonban nehézségekbe ütközött. Ennek magyarázata, hogy a gamma-foton magból történő kilépésekor az atommag visszalökődik, amihez tartozó visszalökődési energia:

$$R = E_R = \frac{E_0^2}{2Mc^2} \quad (4)$$

ahol E_0 a kibocsátott gamma foton energiája, M az atommag tömege és c a fénysebesség. Ez azt jelenti, hogy a kisugárzott foton energiája E_R értékkel csökkent az alap és gerjesztett állapot energiakülönbségéhez képest, amely megakadályozza a magrezonancia abszorpció létrejöttét, mivel a gerjesztett állapot energia bizonytalanságához képest a visszalökődési energia 5-6 nagyságrenddel is nagyobb lehet. A sugárzás rezonanciaszerű abszorpciójánál szintén E_R energiával lökődik előre az abszorbens atommag, tehát a visszalökődések következtében $2E_R$ energiával lesz kevesebb a gerjesztésre fordítható energia. Azonban Rudolf Mössbauernek sikerült visszalökődésmentes magrezonancia abszorpciót elérnie. Kísérletében az atommagénál nagyságrendekkel nagyobb tömegű, szilárd testben, azaz makroszkopikus mátrixban rögzítette a forrás és abszorbens atommagjait tartalmazó atomokat. A kristályrács tulajdonságaiból adódóan nem gerjeszthető tetszőleges energiákkal. Ha a visszalökődési energia kisebb, mint a rács gerjesztéséhez szükséges legkisebb energia-kvantum, bizonyos valószínűséggel (amelyet

Mössbauer-Lamb faktornak nevezünk) létrejöhet a Mössbauer-effektus, azaz a visszalökődésmentes magrezonancia abszorpció.



11. ábra. Rezonancia abszorpció sematikus rajza

A gamma fotonok visszalökődésmentes magrezonancia abszorpciójának valószínűségét a korábban említett Mössbauer-Lamb faktorról lehet leírni. Mössbauer-Lamb faktor értéke külső fizikai változók függvényében megadható összefüggés.

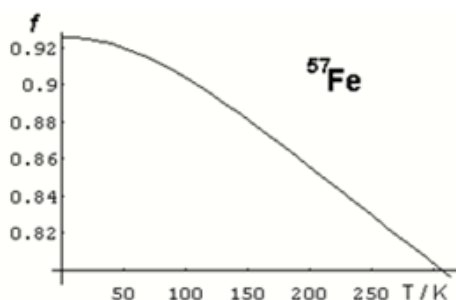
$$f(T, p, H, \dots) = \exp\left(-\frac{\langle x^2 \rangle_T}{\lambda^2}\right) = \exp(-k^2 \langle x^2 \rangle_T) = \exp\left(-\frac{E_0^2}{\hbar^2 c^2} \langle x^2 \rangle_T\right) = \exp\left(-\frac{2ME_R}{\hbar^2} \langle x^2 \rangle_T\right) \quad (5)$$

ahol $\langle x^2 \rangle$ a rácsrezgés amplitúdó négyzet átlaga, $\lambda = \frac{\lambda}{2\pi}$ amelyben λ a gamma sugárzás hullámhossza, E_0 a gamma sugárzás energiája, M az atommag tömege és $\hbar$ a redukált Planck-állandó. A képletből megállapítható, hogy az f faktor, a Mössbauer-effektus valószínűsége csökken a rácsrezgések amplitúdójának növekedésével, azaz a hőmérséklet növekedésével, illetve nő a gamma sugárzás hullámhosszának emelkedésével. Továbbá függ a magtömegről és az átmenet energiájáról. A Debye-modellt alkalmazva az f faktor az alábbi egyenlettel írható le:

$$f = \exp\left[-\frac{E_R}{k_B \Theta_D} \left(\frac{3}{2} + \frac{\pi^2 T^2}{\Theta_D^2}\right)\right] \quad (6)$$

ahol, $T \ll \Theta_D$, Θ_D a kristály Debye-hőmérséklet, E_R a visszlökődési energia, T a mérési hőmérséklet és k_B a Boltzman-állandó.

A kifejezésből látható, hogy f értéke a hőmérséklet növekedésével csökken (12. ábra), illetve, hogy nagyobb Debye-hőmérséklet esetén nagyobb a Mössbauer-effektus valószínűsége. A Mössbauer-Lamb faktor értéke a visszalökődési energiájától (E_R) sem független és ezen keresztül az emittált gamma fotonok energiájától sem.



12. ábra. A Mössbauer-effektus valószínűsége a hőmérséklet függvényében.

Véges élettartamú gerjesztett állapot esetén a kibocsátott fotonok energiája Breit-Wigner eloszlással jellemezhető:

$$I(E) = \frac{\left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}{(E-E(0))^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \quad (7)$$

ahol $I(E)$ a γ -fotonok vonalintenzitás-energia eloszlása, E_0 az atommag gerjesztett és alapállapota közti energiakülönbség és Γ a természetes vonalszélesség. A természetes vonalszélesség leírható a Heisenberg-féle határozatlansági reláció alapján:

$$\Gamma = \frac{\hbar}{\tau} \quad (8)$$

ahol, τ a gerjesztett állapot élettartama, $\hbar = \frac{h}{2\pi}$ a redukált Planck állandó.

^{57}Fe atommag esetén a kibocsátott γ -foton energiája $E_\gamma = 14,4 \text{ keV}$. A Lorentz görbe félértékszélessége $\Gamma = 10^{-9} \text{ eV}$ nagyságrendű. Az ebből kapott energiafelbontás $\left(\frac{\Gamma}{E_\gamma}\right)$ 13 nagyságrendű.

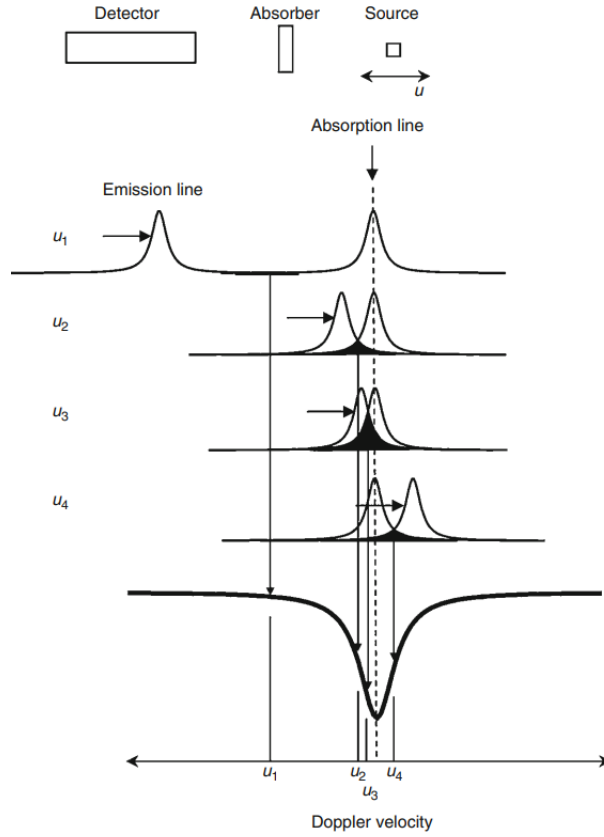
4.2.1.2. A Mössbauer-spektrum

A Mössbauer-effektus mérésénél, a forrásból kibocsátott abszorbensen áthaladt gamma sugárzás energiaceloszlásának a természetes vonalszélességnek megfelelő, pontos detektálása problémákba ütközött, ugyanis a modern detektorok sem rendelkeztek a megfelelő energiafelbontással. A problémát Rudolf Mössbauer úgy oldotta meg, hogy a forrást az abszorbenshez képest kis sebességgel mozgatta, ezzel a sugárzás energiáját a Doppler effektus révén kissé megváltoztatta, így az energiaspektrum letapogatható volt számára. Maga a Mössbauer-spektrum, a doppler sebesség függvényében felvett, beütésszám görbe, amely az áteresztett gamma sugárzás intenzitását jellemzi.

A kisugárzott foton energiájának megváltozása v sebességgel mozgatott sugárforrás esetén:

$$\Delta E = E_\gamma \frac{v}{c} \quad (9)$$

A Mössbauer-spektrum fontos jellemzője a vonalszélesség, amely a gerjesztett állapotok élettartamának függvénye.



13. ábra. A Mössbauer-spektrum kialakulása (Kuzmann és mtsai, 2011)

A detektorba érkező gamma kvantumok eloszlását a következő egyenlet írja le:

$$\begin{aligned}
 T(u) = \exp(-\mu_A d_A) & \left\{ (1 - f_S) \left[\int_0^{d_S} \rho(x) \exp(-\mu_S x) dx \right] + f_S \left[\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\Gamma}{2\pi} * \frac{1}{(E - E_0)^2 + (\Gamma/2)^2} \right. \right. \\
 & * \int_0^{d_S} \rho(x) \exp\left(-\frac{f_S n_S a_S \sigma_0 \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}{(E - E_0)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} x - \mu_S x\right) dx \\
 & \left. \left. * \exp\left(-\frac{\tau_A (\Gamma/2)^2}{\left[E - E_0 \left(1 - \frac{u}{c}\right)\right]^2 + (\Gamma/2)^2}\right) dE \right] \right\} \quad (10)
 \end{aligned}$$

ahol $\tau_A = f_A n_A a_A d_A \sigma_0$ az abszorbens effektív vastagsága, d_A az abszorbens vastagsága, f_A és f_S az abszorbens és a forrás Mössbauer-Lamb faktora, σ_0 a hatáskeresztmetszet, n_A a Mössbauer-nuklidok felületi sűrűsége, a_A a Mössbauer-nuklid abundanciája, μ_A az atomi abszorpciók együttható, Γ a vonal félértékszélessége és u a forrás abszorbenshez képesti relatív mozgás sebessége.

Az egyenlet első tagját szorzó exponenciális tényező megmagyarázza a rezonanciamentes abszorpciót, az abszorbensben. Ezzel a hatással csökken mind a visszalökődött, mind a visszalökődés-mentes fotonok száma. Az egyenlet első tagja a Doppler eltolódástól független, a mozgó forrásból emittált gammasugárzást írja le. A második tagban a forrásból emittálódott gamma fotonok Cauchy eloszlása látható. A harmadik tag a rezonancia és rezonancia mentes, önabszorpciót írja le. Végül az egyenlet negyedik tagja kifejezi az abszorbensben történő visszalökődésmentes rezonancia abszorpciót.

Végtelenül vékony forrás esetén az egyenlet az alábbi alakban írható fel:

$$T(u) = \exp(-\mu_A d_A) \left[1 - f_S + \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\frac{\Gamma f_S}{2\pi}}{(E-E_0)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \exp\left(-\tau_A \frac{\left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}{\left(E-E_0\left(1+\frac{u}{c}\right)\right)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}\right) dE \right] \quad (11)$$

Ez az úgynevezett transzmissziós integrál.

Megfelelően vékony abszorbens esetén a Mössbauer-vonal alakját Lorentz típusú görbével közelíthetjük:

$$I(E) = konst.* \frac{\Gamma}{(E - E_0)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (12)$$

ahol Γ a természetes vonalszélesség és E_0 az emittált gamma kvantumok energiája.

4.2.1.3. Hiperfinom kölcsönhatások

A nagy energiafelbontásnak köszönhetően detektálhatóvá válnak az elektronok és az atommag közötti elektromos és mágneses kölcsönhatások, amelyeket hiperfinom kölcsönhatásoknak nevezünk. Ezek megváltoztatják az alap és a gerjesztett állapotú mag energianívóit. Az energiaváltozások az emissziós és az abszorpciók vonalak félérték-szélességeinek nagyságrendjébe esnek. Mérési módszerünk esetén három ilyen kölcsönhatást különböztetünk meg: elektromos monopólus kölcsönhatást, elektromos kvadrupólus kölcsönhatást és mágneses dipólus kölcsönhatást. Ezeket a hiperfinom kölcsönhatásokat egy-egy Mössbauer-paraméterrel lehet jellemezni, amelyek rendre a következők: izomereltolódás, kvadrupólus- és a mágneses felhasadás. A mért vonalak helyzete, félérték-szélességei és intenzitásai ezen kölcsönhatások következtében megváltoznak.

4.2.1.3.1. Elektromos monopólus kölcsönhatás

Az elektromos monopólus kölcsönhatás alapja az atommag és az elektronok közötti elektrosztatikus Coulomb-kölcsönhatás. Ennek következtében, ha a forrásban és az abszorbensben lévő atomok eltérő kémiai környezetben helyezkednek el, az alap és gerjesztett állapothoz tartozó energia szintek megváltoznak. A forrásból kibocsátott és az abszorbensben abszorbeálható γ -fotonok energiái eltérőek lesznek, amely megváltoztatja a rezonancia abszorpció pozícióját a doppler sebesség skálán. Az energiakülönbségnek megfelelő Doppler-sebességet nevezzük izomer eltolódásnak. A mérés során így az emissziós és az abszorpció görbe nem a 0 sebességnél kerül fedésbe, hanem ettől eltérő v sebességnél.

Az izoméreltolódás:

$$\delta = \delta_c + \delta_{SOD} \quad (13)$$

Az izoméreltolódás két részből tevődik össze: a kémiai izoméreltolódásból és a másodrendű Doppler eltolódásból.

A kémiai izomereltolódás a mag és az elektronok között hat, a hozzá tartozó energia az elektromos monopólus kölcsönhatásból származtatható, ami a forrásban és az abszorbensben található magok helyén lévő „s” elektron sűrűség különbségével arányos.

Az atommagot olyan R sugarú gömbnek feltételezve, amelyben a Ze töltés homogén eloszlásban van, a forrás és az abszorbens magok magátmeneteinek energia különbsége (14. ábra), azaz a kémiai izoméreltolódás energiája:

$$\Delta E = Ze^2(|\Psi_s(O)|_A^2 - |\Psi_s(O)|_F^2) * (R_G^2 - R_A^2) \quad (14)$$

ahol $|\Psi_s(O)|_A^2$; $|\Psi_s(O)|_F^2$ a mag helyén vett elektronsűrűség abszolút értékének négyzete az abszorbensben, illetve a forrásban és R_G ; R_A az alap és gerjesztett állapot magsugara.

Az izomereltolódás másik összetevője a másodrendű vagy hőmérsékleti Doppler-eltolódás. A gamma foton energiája kis mértékben megváltozik:

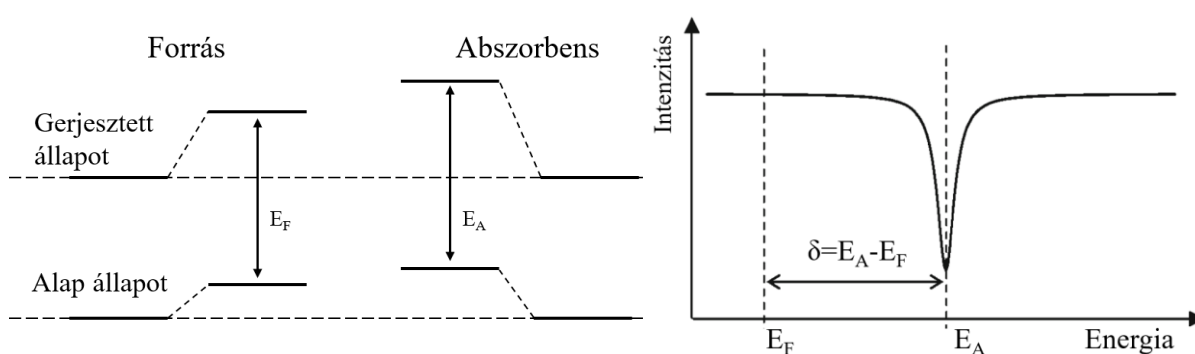
$$\Delta E_{SOD} = -\frac{E_\gamma}{2} * \left(\frac{\langle v^2 \rangle}{c^2} \right) \quad (15)$$

Az energiaváltozás arányos a rácsrezgés sebességének négyzetátlagával ($\langle v^2 \rangle$), ezáltal közvetetten arányos a hőmérséklettel. Az egyenletből következik, hogy a negatív előjel miatt,

a mérési hőmérsékletet csökkentve a spektrum vonalainak helyzete magasabb sebességértékek felé tolódik.

A kémiai izomér eltolódásra vonatkozó (14) egyenletből látható, hogy az energia eltolódás értéke függ a mag helyén levő elektronsűrűségtől. Az energia eltolódás a teljes elektronszerkezetet határozza meg, ezáltal az izomereltolódásból következtetni lehet rá. ^{57}Fe -nél a gerjesztett állapot magsugara kisebb, így a képletnek megfelelően a növekvő elektronsűrűség csökkenő izomereltolódást eredményez.

Az izomereltolódás hatását vizsgálva következtetni lehet a vizsgált anyag Mössbauer-izotópjának oxidációs állapotára, kémiai kötések típusára, a spinállapot változásokra, elektronegativitásbeli változásokra.

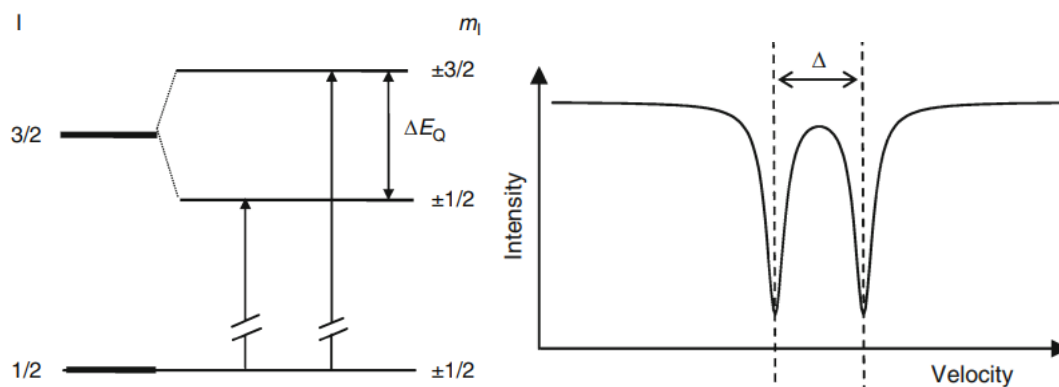


14. ábra. Az izomérreltolódás és megjelenése a Mössbauer-spektrumban

4.2.1.3.2. Elektromos kvadrupólus kölcsönhatás

Ha a mag töltéseloszlása eltér a gömbszimmetrikustól, azaz kvadrupólus-nyomatéka nem zérus és ha az atommagot körülvevő töltéshordozók (nem zárt pályákon, kémiai kötésben lévő elektronok, ionok) téreloszlása inhomogén, akkor elektromos térgradienst hoznak létre a mag helyén. A mag kvadrupólus nyomatéka és az azt körülvevő inhomogén elektromos tér között kölcsönhatás lép fel, amelyet elektromos kvadrupólus kölcsönhatás nevezünk. A kölcsönhatás spektrum abszorpciós vonalainak kvadrupólus felhasadásához vezet.

Az általunk vizsgált ^{57}Fe esetében csak a gerjesztett ($I=3/2$) állapotban lévő magnak van kvadrupólus nyomatéka. A kölcsönhatás két nívóra ($\pm 1/2$ és $\pm 3/2$) hasítja fel a gerjesztett állapotot, amiből az alapállapotba két átmenet lehetséges: $\pm 1/2 \rightarrow \pm 1/2$ és $\pm 3/2 \rightarrow \pm 1/2$. Ez a felhasadás egy dublettet eredményez a spektrumban. A két vonal csúcsa közt lévő, Doppler-sebességben mért távolságot kvadrupólus felhasadásnak nevezzük (15. ábra).



15. ábra. a ^{57}Fe -mag nívóinak kvadrupólus felhasadása és annak megjelenése a Mössbauer-spektrumban
(Kuzmann és mtsai, 2011)

A kvadrupólus felhasadáshoz tartozó energiaszintek különbsége az alábbi kifejezéssel számolható:

$$\Delta E_Q = \frac{eQ}{4I(2I-1)} * \frac{\partial^2 V}{\partial z^2} [3m_I^2 - I(I+1)] \left(1 + \frac{\eta^2}{3}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (16)$$

ahol $\frac{\partial^2 V}{\partial z^2}$ a térgradienst leíró tag, Q a kvadrupólus nyomaték, e az elemi töltés, I magnívó spinje, m_I a mágneses kvantumszám, η az aszimmetria-paraméter, amely axiális szimmetria esetén 0.

A kvadrupólus felhasadásról kapott információkból következtetni tudunk az atommag körüli elektromos tér szimmetria viszonyaira és az izoméreltolódáshoz hasonlóan a spinállapotokra és az oxidációs állapotra.

4.2.1.3.3. Mágneses dipólus kölcsönhatás

Mágneses hiperfinom kölcsönhatás az atommag mágneses momentuma és a mag helyén lévő effektív mágneses tér közötti kölcsönhatás. Ennek következtében a magenergianívók degeneráltságuk miatt Zeeman-felhasadást szenvednek és a gerjesztett atom $2I + 1$ spinű alnívóra hasad fel.

A kölcsönhatáshoz tartozó, mérhető Mössbauer-paraméter a mágneses felhasadás, amelynek energiája az alábbi egyenlettel adható meg:

$$\Delta E_m = -g_I \mu_N B \Delta m_I \quad (17)$$

ahol g a giromágneses faktor, μ_N a mag magneton és B pedig a mágneses tér nagysága a mag helyén.

Az atommag effektív belső mágneses tere három járulékból származtatható.

$$B = B_C + B_D + B_L \quad (18)$$

itt B_C a Fermi- kontakt tér, B_D az elektron spin dipólus tere és B_L a pályamomentumból származó tér.

A (18) képlet alapján, ^{57}Fe esetén a felhasadáskor 6 vonal megjelenése lehetséges ugyanis az átmenetekre vonatkozó kiválasztási szabály értelmében a mágneses kvantumszám változása $0, \pm 1$ értéket vehet fel. Meghatározott vonalak sebességértékei közötti különbségek arányosak a belső mágneses térrel, amelynek értéke a kapott Mössbauer-spektrumokból meghatározható. Különböző hiperfinom térértékeknek, különböző kémiai mikrokozonyezetekben elhelyezkedő Fe-atomok felelnek meg.

Ez a kölcsönhatás kutatásom szempontjából rendkívül fontos, hiszen a mágneses dipólus kölcsönhatást a Mössbauer-spektroszkópia segítségével vizsgálva a minták mágneses tulajdonságaira, kitüntetett mágnesezettségi irányokra következtetni lehet.

4.2.1.4. Relatív vonalterületek a Mössbauer-spektrumban

A Mössbauer-spektrum vonalterülete a vonal alakját általánosan leíró transzmissziós integrál sebesség szerinti integráljával adható meg. Vékony abszorbens közelítésben a vonalterület arányos a Mössbauer-nuklid koncentrációjával, ami az analízis alapjául szolgál.

A Mössbauer-spektrum abszorpciós vonalai relatív területének kiszámításához figyelembe kell venni az emittált, adott multipolaritású sugárzás intenzitásának szögfüggését, $F_{lm}(\theta)$ -t, ahol θ a polárszög, ami a főtengety rendszer „z” tengelye és a megfigyelési irány közötti szög.

$3/2 \rightarrow 1/2$ mágneses dipólus átmenetnél a relatív vonalterülethez tartozó szögfüggést, valamint az azokhoz tartozó Clebschs-Gordon együtthatók négyzetét az alábbi táblázat tartalmazza:

5.táblázat. A vonalterületek szögfüggése mágneses dipólus átmenet esetén.

$m_{3/2}$	$m_{1/2}$	m	Clebschs-Gordon együtthatók négyzete $\left(\begin{array}{ccc} 1/2 & 1 & 3/2 \\ -m_{1/2} & m & m_{3/2} \end{array} \right)^2$	Vonalterület szög függése $F_{lm}(\theta)$
3/2	1/2	-1	$\frac{3}{12}$	$\frac{3}{8}(1 + \cos^2 \theta)$
1/2	1/2	0	$\frac{2}{12}$	$\frac{3}{4} \sin^2 \theta$
-1/2	1/2	1	$\frac{1}{12}$	$\frac{3}{8}(1 + \cos^2 \theta)$
-3/2	1/2	2	nem megengedett	
3/2	-1/2	-2	nem megengedett	
1/2	-1/2	-1	$\frac{1}{12}$	$\frac{3}{8}(1 + \cos^2 \theta)$
-1/2	-1/2	0	$\frac{2}{12}$	$\frac{3}{4} \sin^2 \theta$
-3/2	-1/2	1	$\frac{3}{12}$	$\frac{3}{8}(1 + \cos^2 \theta)$

A mágnesesen felhasadt spektrum egyes vonalterületei az alábbi egyenletekkel fejezhetőek ki:

$$A_1(\theta) = A_6(\theta) = \frac{3}{16}(1 + \cos^2 \theta) \quad (19)$$

$$A_2(\theta) = A_5(\theta) = \frac{4}{16}(1 - \cos^2 \theta) \quad (20)$$

$$A_3(\theta) = A_4(\theta) = \frac{1}{3}A_1(\theta) = \frac{1}{3}A_6(\theta) = \frac{1}{16}(1 + \cos^2 \theta) \quad (21)$$

ahol θ az effektív mágneses tér átlagos iránya és a gamma sugárzás által közbezárt szög, A_i a szextett i -edik vonalának a területe.

Abban az esetben, ha a mágneses tér iránya izotróp eloszlású a mintában, például textúra mentes vagy porminta esetén, akkor a relatív terület arányok a következők:

$$A_1:A_2:A_3:A_4:A_5:A_6 = 3:2:1:1:2:3$$

A 2-es és 5-ös vonal relatív területe kiválóan jellemzi kitüntetett mágneses orientáció vagy textúra esetén a mágneses tér gammasugárzáshoz képesti átlagos irányának megváltozását, amelyet a következő egyenlettel írhatunk le:

$$R = \frac{A_{2,5}}{A_{1,6}} = \frac{4 \sin^2 \theta}{3(1 + \cos^2 \theta)} \quad (22)$$

Az arányok alapján $I_{1,6}/I_{3,4} = 3$, aminek segítségével a 3-as és 4-es vonalak intenzitásával is felírhatjuk az összefüggést:

$$R = \frac{A_{2,5}}{A_{3,4}} = \frac{4 \sin^2 \theta}{(1 + \cos^2 \theta)} \quad (23)$$

A (24) egyenletet átírva megkapható a számunkra fontos szög:

$$\theta = \arccos \sqrt{\frac{4 - R}{4 + R}} \quad (24)$$

A (24) összefüggést használva $R = 4$ érték esetében $\theta = 90^\circ$, amely a minta síkjára merőleges gamma sugárzás esetén azt jelentené, hogy a mágneses nyomaték a minta síkjában fekszik.

Hengerszimmetrikus textúra esetén $R = \frac{2}{3}$, amihez tartozó szög értéke $\theta = 54,7^\circ$ ami az úgynevezett mágikus szög.

4.2.1.5. Mössbauer-mérési körülmények

A besugárzott és besugárzatlan mintákat a tömbi rész mérése céljából transzmissziós geometriában mértem meg. ^{57}Fe Mössbauer-mérésekhez Wissel típusú Mössbauer-spektrométereket használtam. A transzmissziós geometriában a sugárforrás mozgása állandó gyorsulású volt, amelynek előjelét félperiódusonként változtattuk. A spektrumok felvétele szcintillációs detektorral és intelligens sokcsatornás analízátor funkcióját ellátó DMSPCA PC kártya segítségével, szobahőmérsékleten történt. A sugárforrás $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$ volt. A kiértékeléshez szükséges kalibrációs spektrumokat $\alpha\text{-Fe}$ kaliber szobahőmérsékleten történő mérésével vettem fel. A Mössbauer-spektrumok kiértékeléséhez a MOSSWINN 4.0 programot használtam.

5. Eredmények és értékelésük

5.1. Mössbauer-vizsgálatok eredményei

5.1.1. Nagyenergiájú nehézionokkal történő kétoldali besugárzás hatása FINEMET szalagokon

Vizsgálataim szempontjából a legfontosabb cél az volt, hogy a CK3221 és CK3231 minták mindkét oldalról, azaz teljes mélységében, 160 MeV $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal, 10^{13} ion/cm² dózissal történő besugárzás hatására végbemenő mágneses orientáció változásokról kapjak információt Mössbauer-spektroszkópia segítségével.

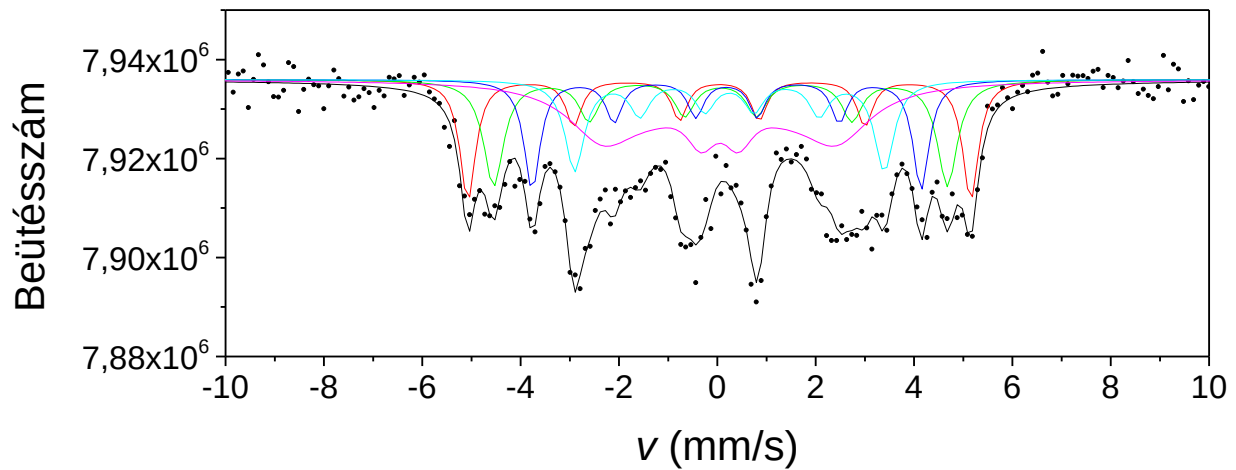
Először azokat a Mössbauer-eredményeket mutatom be, amelyekhez tartozó méréseket olyan FINEMET szalagokon mértem, amelyek a dubnai EAI IC-100-as ciklotronjában korábban már a fényes oldal felől besugároztak, de újonnan a matt oldal felől kerültek ismét besugárzásra. Erre azért volt szükség, mert a 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal történő besugárzás a FINEMET mintákat csak a mintavastagság feléig képes besugározni, ugyanakkor az ellentétes oldalról történő besugárzással a teljes mintatérfogat besugárzásra került.

A Mössbauer-mérési körülmények a 7. táblázatban láthatóak.

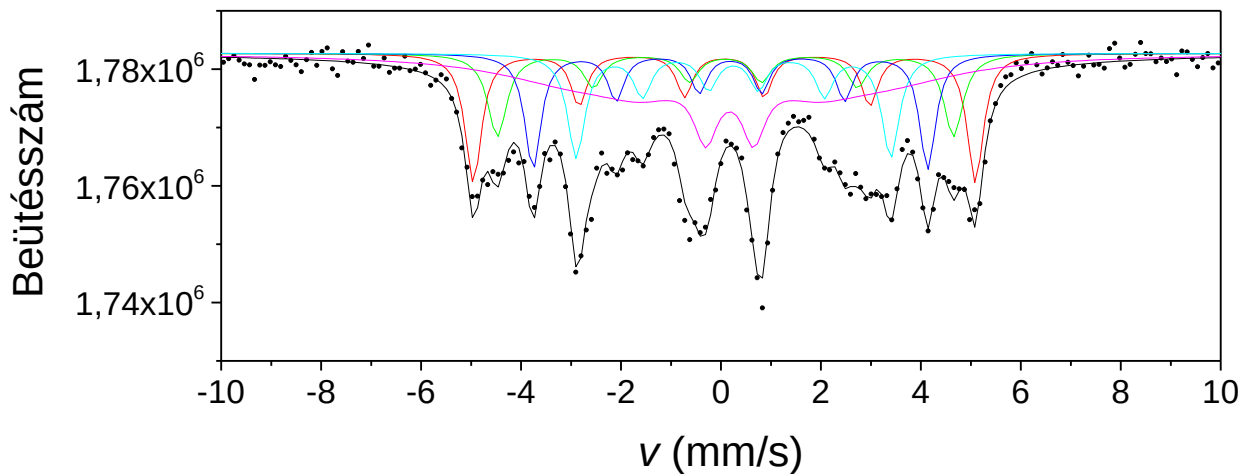
A mindkét oldaláról 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal 10^{13} ion/cm² dózissal besugárzott CK3221 minta és CK3231 minta transzmissziós szobahőmérsékleti Mössbauer-spektrumai az 19. és az 20. ábrán láthatók

7. táblázat: CK3221-s és CK3231-s minták Mössbauer-mérési körülményei

Minta	CK3221	CK3231
Besugárzás	Korábban a fényes oldal felől Újólág a matt oldal felől	Korábban a fényes oldal felől Újólág a matt oldal felől
Mérési geometria	Transzmissziós	Transzmissziós
Mérési hőmérséklet	Szobahőmérséklet	Szobahőmérséklet
Mérőberendezés	Wissel-4	Wissel-5
Mérési sebesség tartomány (önkéntes egységben)	3	2,8



19. ábra. Mindkét oldal felől 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal 10^{13} ion/cm² dózissal besugárzott CK3221 minta transzmissziós szobahőmérsékleti Mössbauer-spektruma



20. ábra. Mindkét oldal felől 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal 10^{13} ion/cm² dózissal besugárzott CK3231 minta transzmissziós szobahőmérsékleti Mössbauer-spektruma

A 19. és 20. ábrán látható spektrumok szuperponált burkoló görbéje öt különböző mágneses tér értékkel rendelkező szextetre jól illeszthető a korábbi munkákban alkalmazott felbontásnak megfelelően (Kuzmann és mtsai, 2012), (Sápi, 2010), (Mozolai, 2020). A kapott $B \sim 31$ T értékkel rendelkező szextett a „B” alrácshoz tartozik (3. ábra), amelyben a hozzá tartozó vas atomok 7 illetve 8 vas atom szomszédal rendelkeznek. A $B \sim 28$ T, ~ 24 T és ~ 19 T mágneses terekhez tartozó három szextett az „A” alrácshoz tartozik, amelyben elhelyezkedő vas atomok rendre 6, 5 illetve 4 vas atom szomszédal rendelkeznek a Fe-Si nano-kiválásokban; és végül a $B \sim 18$ T szextett az amorf komponenshez kapcsolódik. A kutatásunk szempontjából a legfontosabb az volt, hogy a szextettekhez tartozó relatív vonalterületeket, különösen az

$A_{2,5}/A_{3,4}$ értékét a spektrumvonalak alkalmas illesztésével meghatározzuk. A mindkét oldalról besugárzott CK3221 és CK3231 FINEMET szalagok effektív mágneses indukció értékei és a relatív vonalterület arányok 8. táblázatban láthatóak.

A mágneses anizotrópia meghatározásához a 8. táblázatban lévő illesztés útján kapott, $A_{2,5}/A_{3,4}$ vonalterület arányokat használtam fel, amelynek segítségével a gamma sugárzás és a mágnesezettség átlagos iránya között közbezárt θ szög a (24) összefüggést alkalmazva 0,2 értékű abszolút hibával meghatározható volt. A kiértékeléskor kapott $A_{2,5}/A_{3,4}$ vonalterület arányokat és a hozzájuk tartozó θ szöget a 9. táblázat tartalmazza.

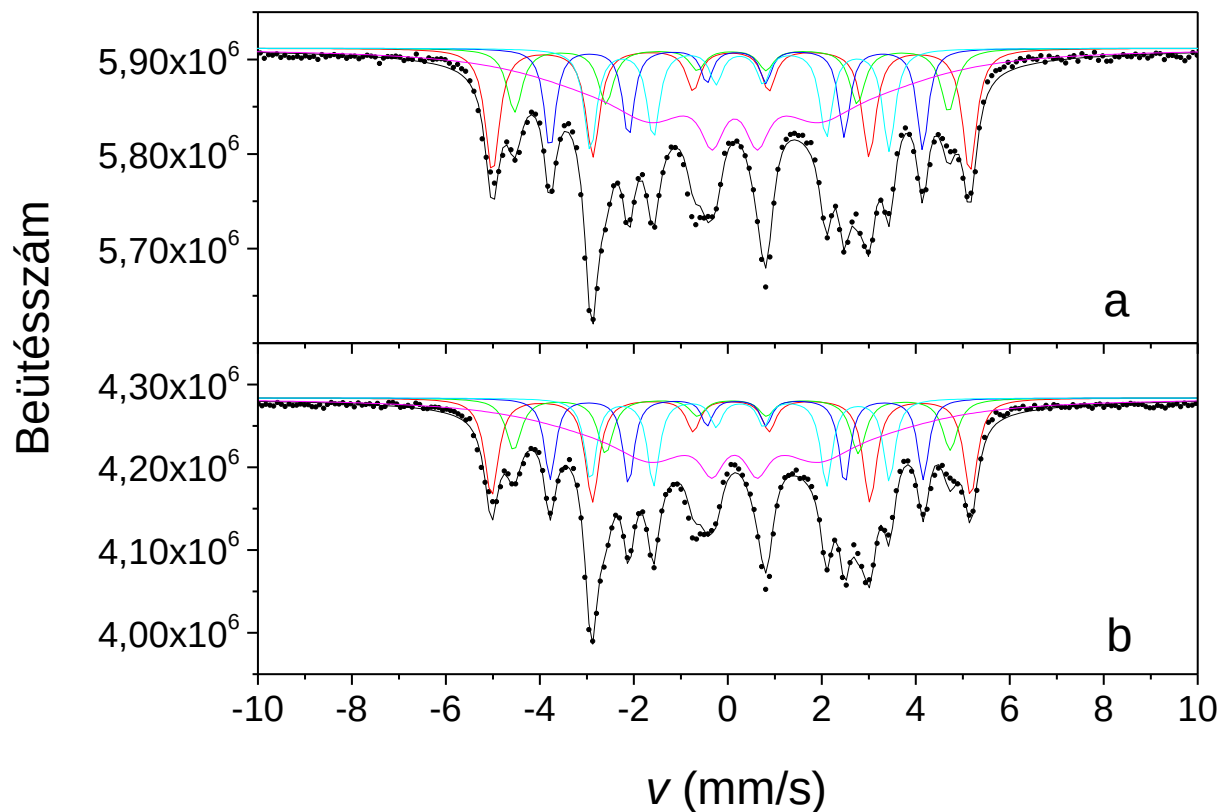
8. táblázat. A mindkét oldalról 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal 10^{13} ion/cm² dózissal besugárzott CK3221 és CK3231 minták effektív mágneses indukció értékei és relatív vonalterület arányok

Minta	CK3221	CK3231
B (T) / 1	$31,70 \pm 0,08$	$31,22 \pm 0,05$
B (T) / 2	$28,63 \pm 0,12$	$28,36 \pm 0,1$
B (T) / 3	$24,62 \pm 0,08$	$24,54 \pm 0,05$
B (T) / 4	$19,59 \pm 0,11$	$19,55 \pm 0,05$
B (T) / 5 (rögzítve)	16,21	18,77
$A_{2,5}/A_{3,4}$	$1,15 \pm 0,08$	$1,20 \pm 0,04$

9. táblázat. A mindkét oldalról 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal 10^{13} ion/cm² dózissal teljes térfogatában besugárzott CK3221 és CK3231 minták mágneses anizotrópiáját jellemző irányszög

Minta	$A_{2,5}/A_{3,4}$	θ (°)
CK3221	1,15	41,9
CK3231	1,20	42,8

A 9. táblázatban feltüntetett, mindkét oldalról besugárzott CK3221 és CK3231 minták mágneses anizotrópiáját jellemző irányszögre kapott eredményeimet először a besugárzatlan minta, majd az egyoldalról besugárzott minta mágneses anizotrópiájára jellemző irányszögével hasonlítom össze a következőkben.



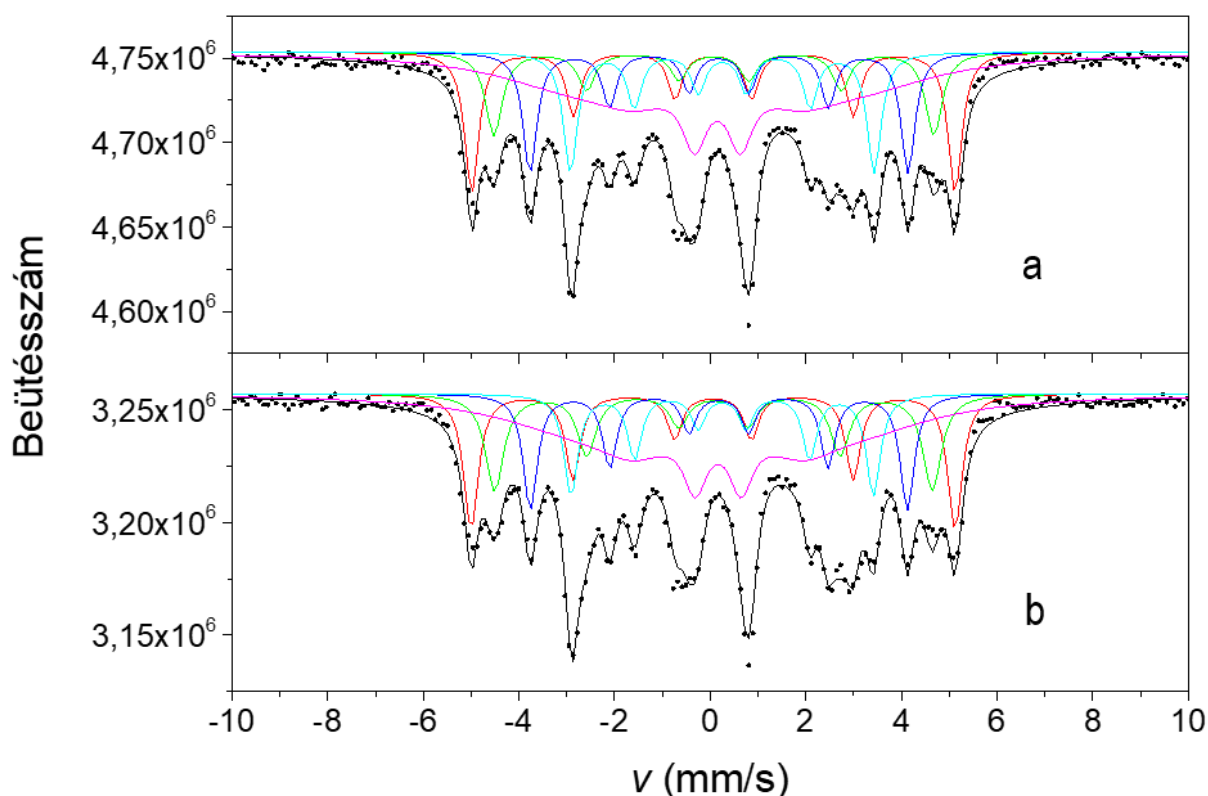
21. ábra. A besugárzatlan 021 (a) és 022 (b) FINEMET Mössbauer-spektrumai

10. táblázat. A besugárzatlan FINEMET 021 és 022 minták mágneses anizotrópiáját jellemző irányszög

Minta	CK021 besugárzatlan	CK022 besugárzatlan
$A_{2,5}/A_{3,4}$	2,60	3,18
θ (°)	62,6	70,3

A besugárzatlan minták Mössbauer-spektrumait a 21. ábra, a spektrum-paraméterek alapján számított $A_{2,5}/A_{3,4}$ vonalterület arányokat (Kuzmann és mtsai, 2022), (Mozolai, 2020) és a hozzájuk tartozó θ szöget a 10. táblázat mutatja.

A fényes oldal felől egyszeresen 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal 10^{13} ion/cm² dózissal besugárzott minták Mössbauer-spektrumait a 22. ábra, a spektrum-paraméterek alapján számított $A_{2,5}/A_{3,4}$ vonalterület arányokat és a hozzájuk tartozó θ szöget a 11. táblázat mutatja.



22. ábra. Az egyszeri, fényes oldal felől 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal 10^{13} ion/cm² dózissal besugárzott CK021 (a) és CK022 (b) FINEMET Mössbauer-spektrumai

11. táblázat. Az egyszeri fényes oldal felől 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal 10^{13} ion/cm² dózissal besugárzott FINEMET CK021 és CK022 minták mágneses anizotrópiáját jellemző irányaszög

Minta	CK021 FINEMET egyoldalról besugárzott	CK022 FINEMET egyoldalról besugárzott
$A_{2,5}/A_{3,4}$	1,36	1,9
θ (°)	45,4	53,4

A kapott adatokból megállapítható, hogy a mindkét oldalról 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal 10^{13} ion/cm² dózissal besugárzott CK021 és CK022 FINEMET mágneses orientáció mértékét megadó θ irányaszög (9. táblázat) lényegesen kisebb mindkét minta esetében, mint ami az egyoldalról besugárzott mintákat jellemzi (22. ábra és 11. táblázat) és még kisebb, mint ami a besugárzatlan mintához tartozót (21. ábra. 10. táblázat) jellemezte. Ebből egyértelműen látható, hogy az alkalmazott nagyenergiájú nehézion besugárzás a mágneses nyomaték átlagos orientációját, ezáltal a mágneses orientációt az egyszeresen, egy oldalról történő besugárzáshoz képest tovább változtatja, úgy, hogy a mágneses anizotrópia tovább csökken. Továbbá megfigyelhető, hogy a másodszori besugárzás hatására mindkét minta esetében, a mágneses

orientáció kisebb mértékben változott meg ahhoz képest, mint amit az első besugárzás eredményezett (Kuzmann és mtsai, 2022). A vizsgált első besugárzáshoz képest a kisebb permeabilitással rendelkező CK3221-es mintán az egyoldali besugárzás által keltett, kisebb relatív vonalterület arányokról indulva ($A_{2,5}/A_{3,4} = 1,36$), a másik oldalról történő besugárzás kisebb változást ($A_{2,5}/A_{3,4} = 1,36$ -ról $A_{2,5}/A_{3,4} = 1,15$ -re), amíg a nagyobb permeabilitású CK3231-s minta magasabb területarányokról indulva ($A_{2,5}/A_{3,4} = 1,9$) nagyobb mértékű változást ($A_{2,5}/A_{3,4} = 1,9$ -ról $A_{2,5}/A_{3,4} = 1,20$ -ra) okozott. Ebből arra következtethetünk, hogy a besugárzás mágneses anizotrópiára gyakorolt hatását a mágneses anizotrópia kiinduló állapota befolyásolja. Amennyiben az első besugárzás hatását az orientációs θ szögre vonatkozóan lineáris közelítésben extrapolálnánk a második besugárzásra vonatkozóan, akkor a második besugárzásnak a tapasztaltnál kisebb orientációs szöget kellene eredményeznie. Az az eredményünk, hogy ez nem következett be, arra engedhet következtetni, hogy van olyan határszöge (a mágikus szög pótszöge közelében) a mágneses anizotrópia irányának a nagyenergiájú nehézion besugárzás hatására való megváltozására vonatkozóan, amelynél a mágneses anizotrópia minimális. Ez a következtetés jól összeegyeztethető azzal, hogy a korábbi, jelenleg alkalmazott besugárzáshoz képest sokkal nagyobb energiájú Bi és Kr ionokkal történő FINEMET minták besugárzása esetén sem tapasztaltak az említett határszög közelében lévő irányaszög értékeknél kisebbet (Kuzmann és mtsai, 2012).

Fontos eredmény, hogy a fenti FINEMET ötvözetek mindkét oldali besugárzás hatására vonatkozó eredmények megismerésével sikerült információt nyerni a minták anizotrópiájának a megváltozásáról a besugárzatlan mintákéhoz képest a teljes mintatérfogatban. A teljes besugárzás mindkét mintában a határszög közelében lévő anizotrópiaváltozáshoz vezetett. A korábbi irodalmi adatokkal összevetve (Kuzmann és mtsai, 2012) arra következtethetünk, hogy a 160 MeV energiájú, 10^{13} ion/cm² dózisu $^{132}\text{Xe}^{28+}$ besugárzás is közel a maximális hatást tudja kifejteni a mágnesezettség orientációjára vonatkozóan.

5.1.2. Egyoldalról történő nagyenergiájú nehézion besugárzás hatásának a Mössbauer-vizsgálata extrém nagy permeabilitású, hőkezelt FINEMET ötvözetekben

Az extrém nagy permeabilitású ($\mu=190000$) FINEMET ötvözet különös fontossággal rendelkezik a technikai alkalmazások szempontjából. A nagy permeabilitásnak megfelelően, egy korábbi munka alapján (Kuzmann és mtsai, 2013) a mágneses momentum irányultsága a minta síkja közelében várható az alakanizotrópiára vonatkozó hatás domináns érvényesülése

értelmében. Ennek megfelelően különösen érdekes, hogy az általunk alkalmazott nagyenergiájú nehézion besugárzás milyen mértékű anizotrópia változást tud okozni ebben az ötvözetben. Másrészt azt is vizsgáljuk, hogy van-e különbség akkor, ha az egyoldalról történő besugárzást a matt oldal felől vagy a fényes oldal felől alkalmazzuk. Mindezek tanulmányozása céljából, a 190000 permeabilitással rendelkező besugárzatlan mintán kívül, a minta két külön darabján, egymástól függetlenül, két különböző időpontban történő 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal, 10^{13} ion/cm² dózisu besugárzás hatását vizsgáltam transzmissziós Mössbauer-spektroszkópia segítségével.

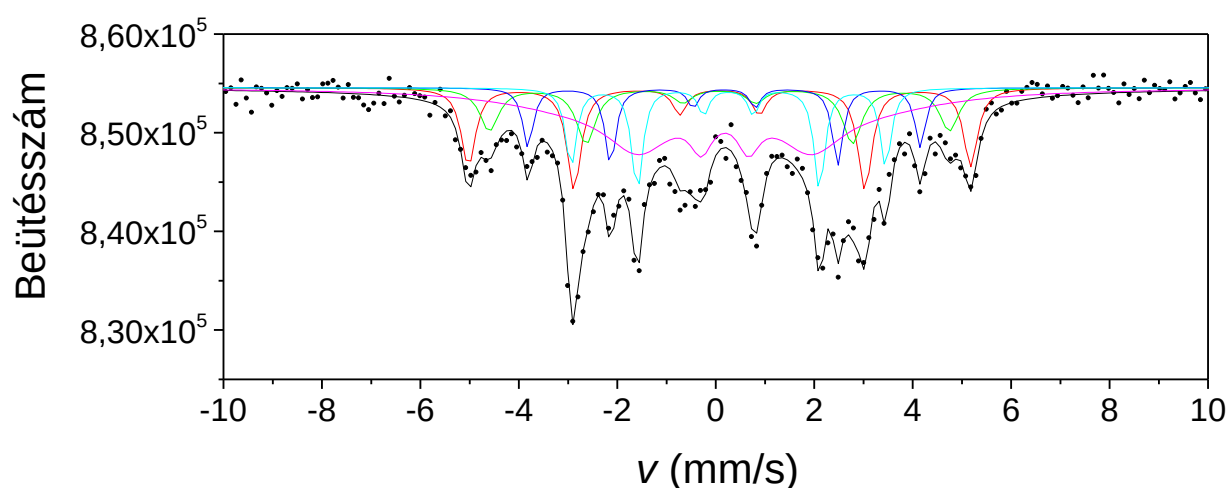
A 23. ábrán a 190000 permeabilitású besugárzatlan 023-as minta szobahőmérsékleti Mössbauer-spektruma látható.

A mérési körülmények adatait a 12. táblázat foglalja össze.

12.táblázat. Minták és Mössbauer-mérési körülményeinek az adatai

Minta neve	Finemet 023	Finemet CK223	Finemet CK3241
Mérési geometria	Transzmissziós		
Mérési hőmérséklet	Szobahőmérséklet		
Mérőberendezés	Wissel-5	Wissel-4	Wissel-5
Mérési sebesség tartomány	2,8	2	2,8

A mért transzmissziós Mössbauer-spektrumok 23-25. ábrán vannak bemutatva.



23. ábra. A besugárzatlan 190000 permeabilitású 023-as minta Mössbauer-spektruma

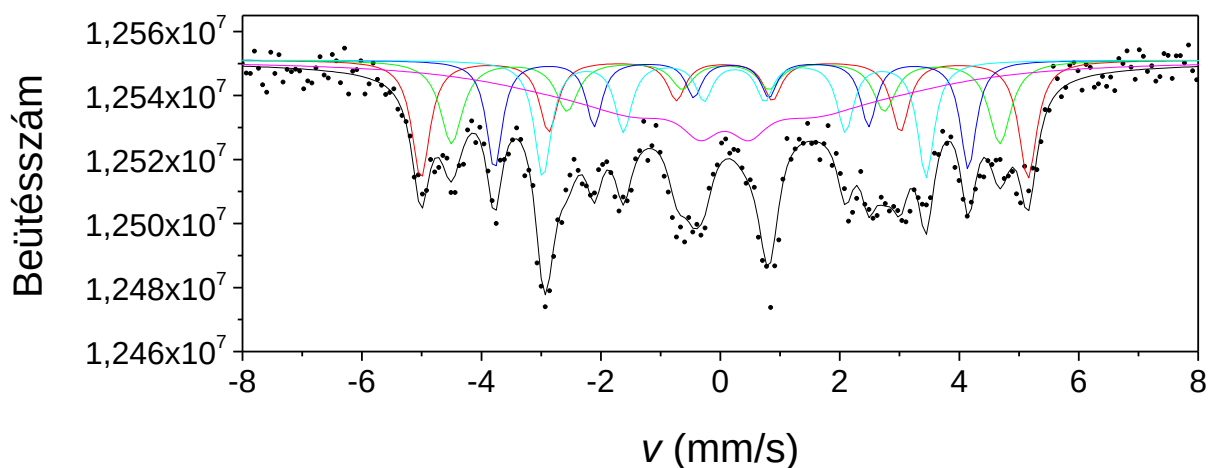
A besugárzatlan Finemet 023 Mössbauer-spektrumát a korábbiakhoz hasonlóan öt szextettre értékeltem, amelyekhez tartozó effektív mágneses indukció értékek és a relatív vonalterület arányok 13. táblázatban láthatók.

13. táblázat. Besugárzatlan Finemet 023 effektív mágneses indukció értékei és az $A_{2,5}/A_{3,4}$ vonalterület arány

Minta	Finemet 023
B (T) / 1	$31,71 \pm 0,08$
B (T) / 2	$29,04 \pm 0,21$
B (T) / 3	$24,77 \pm 0,07$
B (T) / 4	$19,86 \pm 0,05$
B (T) / 5 (rögzítve)	18,77
$A_{2,5}/A_{3,4}$	$3,9 \pm 0,15$

Az $A_{2,5}/A_{3,4} = 3,9$ érték alapján számolt θ szög értéke $83,5^\circ$. Ez valóban azt mutatja, hogy a mágneses nyomaték viszonylag közel fekszik a minta síkjához, az említett elvárásnak és a permeabilitás és a mágneses anizotrópia közti korrelációnak (Kuzmann és mtsai, 2013) megfelelően.

A fényes oldaláról besugárzott CK223-as minta Mössbauer-spektruma 24. ábrán van feltüntetve, amíg a mintához tartozó effektív mágneses indukció értékek és a relatív vonalterület arányok a 14. táblázatban láthatók.



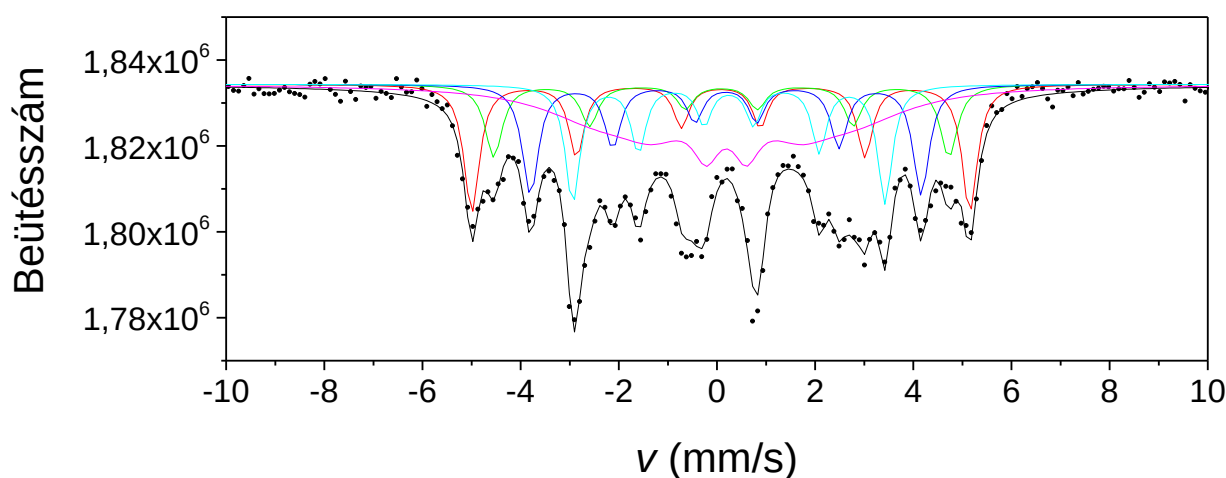
24. ábra. A fényes oldaláról besugárzott, Finemet CK223 minta Mössbauer-spektruma

14. táblázat. A fényes oldaláról besugárzott CK223-s mintához tartozó effektív mágneses indukció értékek és a relatív vonalterület arányok

Minta	Finemet CK223
B (T) / 1	$31,58 \pm 0,06$
B (T) / 2	$28,52 \pm 0,1$
B (T) / 3	$24,66 \pm 0,05$
B (T) / 4	$19,93 \pm 0,05$
B (T) / 5 (rögzítve)	15,77
$A_{2,5}/A_{3,4}$	$1,8 \pm 0,06$

Már a 23. és 24. ábra Mössbauer-spektrumainak összehasonlításából is szembetűnő a 2-es és 5-ös vonalak relatív területének a megváltozása, azaz a mágneses anizotrópia változás a nagyenergiájú nehézion besugárzás következtében. A 14. táblázat $A_{2,5}/A_{3,4}$ adataiból számított θ szög értéke 52° .

A matt oldalról besugárzott minta Mössbauer-spektrumát a 25. ábra mutatja és a hozzá tartozó effektív mágneses indukció értékek és a relatív vonalterület arányok a 15. táblázatban láthatók.



25. ábra. A matt oldalról besugárzott, CK3241 minta Mössbauer-spektruma.

15. táblázat. A matt oldalról besugárzott, CK3241 mintához tartozó effektív mágneses indukció értékek és a relatív vonalterület arányok

Minta	Finemet CK3241
B (T) / 1	$31,58 \pm 0,12$
B (T) / 2	$29,24 \pm 0,19$
B (T) / 3	$24,71 \pm 0,17$
B (T) / 4	$19,50 \pm 0,16$
B (T) / 5 (rögzítve)	16,00
$A_{2,5}/A_{3,4}$	$1,74 \pm 0,09$

A spektrumokból kapott $A_{2,5}/A_{3,4}$ arányokat és a hozzájuk tartozó θ szögek összefoglalását a 16. táblázat tartalmazza.

16.táblázat. A spektrumokból kapott $A_{2,5}/A_{3,4}$ arányok és a hozzájuk tartozó θ szögek

Minta	$A_{2,5}/A_{3,4}$	θ (°)
Finemet 023	3,9	83,5
Finemet CK223	1,8	52
Finemet CK3241	1,74	51,1

A kapott transzmissziós Mössbauer-spektrumok hasonlóak a korábban kiértékeltekhez. A nagyenergiájú nehézion besugárzás hatására a relatív vonalterület arányokban jelentős csökkenés következett be, ezáltal a gamma sugárzás és mágneses orientáció által közbezárt szög lecsökkent, amely eredmény egybevág Kuzmann és munkatársai (Kuzmann és mtsai, 2022) által megfigyelt jelenséggel. A besugárzatlan $\mu=190000$ permeabilitású minta mágneses nyomatékának orientációváltozása a besugárzás következtében sokkal nagyobb, mint a jóval kisebb permeabilitású CK021 és CK022 minták esetén adódott.

A mágneses nyomaték irány megváltozásának az oka a besugárzás hatására létrejövő vakanciák körüli feszültségtér hatása a spinorientációra, amely hatás arányos a bevitt hibák számával. Ez a 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal 10^{13} ion/cm² dózissal történő besugárzás esetén a SRIM 13 kód alapján számolva iononként 61425 vakanciát jelent.

A hőkezelt besugárzatlan mintából vett egyik darab, korábban a fényes oldal felől besugárzott mintára kapott mágneses orientáció és a gamma sugárzás által közbezárt szög 52°, míg másik besugárzatlan részt véve, más alkalommal, de ugyanazon feltételekkel a matt oldal felől történt besugárzás után ez az érték 51,1°-nak adódott. A két értéket összehasonlítva hibahatáron belül, kiváló egyezést tapasztaltunk.

6. Összefoglalás

Diákköri munkám során $\text{Fe}_{73.5}\text{Si}_{13.5}\text{Nb}_3\text{B}_9\text{Cu}_1$ összetételű, különböző permeabilitású hőkezelt FINEMET típusú nanokristályos anyagokban a nagyenergiájú nehézion besugárzás hatására kialakuló mágneses anizotrópia változását tanulmányoztam elsődlegesen a ^{57}Fe Mössbauer-spektroszkópia segítségével. A besugárzás 160 MeV energiájú $^{132}\text{Xe}^{28+}$ ionokkal szobahőmérsékleten 10^{13} ion/cm² dózissal a dubnai EAI-ban történt. Elsősorban, azt kívántam vizsgálni, hogy a nagyenergiájú nehézion besugárzás milyen hatást gyakorol a hőkezelt FINEMET szalagok mágnesezettségének az orientációjára, különös tekintettel olyan mintákon, amelyek előzetesen már részlegesen besugárzásra kerültek. A Mössbauer-spektroszkópia alkalmazásánál a mágneses anizotrópia vizsgálatára helyeztem a hangsúlyt, ami a mágnesezettséggel arányos belső mágneses tér átlagos irányának a Mössbauer-spektrumokból történő meghatározásán alapult. Ily módon, a mágnesesen felhasadt Mössbauer-spektrum relatív vonalterületeinek analízisével a mágneses tér átlagos irányának a minta síkjára merőleges gamma-sugárzással bezárt szögét mértem meg.

A besugárzás előtt és után megmért FINEMET mintákon kapott eredmények összehasonlításából arra a következtésre jutottam, hogy a mágneses orientáció a nagyenergiájú nehézion besugárzás hatására megváltozik, amely szerint a besugárzás hatására a mágneses tér átlagos iránya a minta síkjától a sík normálisa felé fordul. Ez a hatás eltérő mértékben érvényesül a különböző permeabilitású mintákon, valamint a részlegesen és teljesen besugárzott szalagokon. A részlegesen és teljesen besugárzott ötvözetekre kapott eredmények egy határszöget valószínűsítene a mágneses orientációra vonatkozóan. Eredményeim megerősítik és kiegészítik a korábbi munkában más FINEMET mintákon más nehézionokkal történt besugárzás eredményeire vonatkozó következtetéseket. A kapott eredmények arra is utalnak, hogy a FINEMET lágymágneses tulajdonságai nagyenergiájú nehézion besugárzás segítségével kedvezően módosíthatók.

7. Irodalmi hivatkozások

Borrego, J.; Peña Rodríguez, V.; Conde, A. Mössbauer study of the nanocrystallization of the amorphous system $\text{Fe}_{73.5}\text{Si}_{13.5}\text{B}_9\text{Cu}_1\text{Nb}_1\text{X}_2$ with $\text{X}=\text{Nb}$, Mo , V and Zr . *Hyperfine Interactions* **1997**, 110, 1–6

Borrego, J.M.; Conde, A.; Pena-Rodríguez, V.A.; Greneche, J.M. A Fitting Procedure to Describe Mössbauer Spectra of FINEMET-type Nanocrystalline Alloys. *Hyp. Int.* **2000**, 131, 67–82

Chizhik, A.; Stupakiewicz, A.; Gonzalez, J. Tunable Magnetic Anisotropy and Magnetization Reversal in Microwires. In *High Performance Soft Magnetic Materials*; Zhukov, A., Ed.; Springer Series in Materials Science, **2017**, Volume 252, pp. 111–129.

Cranshaw, T. E.; Dale, B. W.; Longworth, G. O.; Johnson, C. E. *Mossbauer spectroscopy and its applications*. Cambridge, Cambridge University Press, **1985**

Czirák, Á.; Udvardy, O.; Lovas, A.; Tichy, G. Some structural aspects of magnetic property evolution in FINEMET-type sensor material during amorphous-nanocrystalline. *Period. Polytech. Trans. Eng.* **2004**, 47, 167–176.

Dickson, D. P. E.; Berry, F. J. *Mossbauer spectroscopy*. Cambridge, Cambridge University Press, **1986**

Dubey, R.; Gupta, A.; Sharma, P.; Darowski, N.; Schumacher, G. Tailoring of magnetic anisotropy in amorphous and nanocrystalline soft magnetic alloys using swift heavy ions, *J. Magn. Magn. Mater.* **2007**, 310, 2491–2493

FINEMET Catalog, Hitachi Metals, Ltd.; **2020**, <http://www.hitachi-metals.co.jp/e/prod/prod02>.

Fiorillo, F.; Pasquale, M.; Appino, C. *Soft Magnetic Materials*. In *Wiley Encyclopedia of Electrical and Electronics Engineering*; Webster, J., Ed.; John Wiley & Sons, **2016**, pp. 1–34.

Gonser, U. (Ed): *Mössbauer Spectroscopy*, Topics in Applied Physics, Springer, Berlin, **1975**.

Gupta, A., Bhagat, N., Principi, G. Mössbauer study of magnetic interactions in nanocrystalline $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{16.5}\text{B}_6$. *J. Phys. Condens. Matter* **1994**, 7, 2237–2248

Greenwood, N. N.; Gibb, T. C. *Mossbauer Spectroscopy*. London, Chapman and Hall, **1971**

Hampel, G.; Pundt, A.; Hesse, J. Crystallization of $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$: structure and kinetics examined by x-ray diffraction and Mossbauer effect spectroscopy. *J. Phys.: Condens. Matter* **1992**, 4, 3195–3214

Herzer, G. Creep induced magnetic anisotropy in nanocrystalline Fe–Cu–Nb–Si–B alloys. *IEEE Trans. Magn.* **1994**, 30, 4800–4802.

Herzer, G. Grain structure and magnetism of nanocrystalline ferromagnets. *IEEE Trans. Magn.* **1989**, 25, 3327–3329.

Hofmann, B.; Kronmüller, H.; Creep induced magnetic anisotropy in nanocrystalline $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$. *Nanostruct. Mater.* **1995**, 6, 961-964.

Hono, K.; Inoue, A.; Sakurai, T. Atom probe analysis of $\text{Fe}_{73.5}\text{Si}_{13.5}\text{B}_9\text{Nb}_3\text{Cu}_1$ nanocrystalline soft magnetic material. *Appl. Phys. Lett.* **1991**, 58, 2180

Jiang, J.; Zemcik, T.; Aubertin, F.; Gonser, U Investigation of the phases and magnetization orientation in crystalline $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{16.5}\text{B}_6$ alloy. *J. Mater. Sci. Lett.* **1991**, 10, 763–764

Kane, S. N.; Alves, F.; Gupta, A. et al. Study of rapid stress annealed nano-crystalline $\text{Fe}_{74.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_6$ alloy. *Hyperfine Interact* **2009**, 191, 47–53

Kataoka, N.; Inoue, A.; Masumoto, T.; Yoshizawa, Y.; Yamauchi, K. Effect of Additional Cu Element on Structure and Crystallization Behavior of Amorphous FeNb-Si-B Alloys. *Jpn J. Appl. Phys.* **1989**, 28, L1820

Koba, K.; Arakawa, D.; Fujieda, M.; Ikegami, K.; Ishi, Y.; Kanai, Y.; Kubota, C.; Machida, S.; Mori, Y.; Ohmori, C.; Shinto, K.; Shibuya, S.; Takagi, A.; Toyama, T.; Uesugi, T.; Watanabe, T.; Yamamoto, M.; Yokoi, T.; Yoshii, M. Longitudinal impedance tuner using new material FINEMET. *Rev. Sci. Instr.* **1999**, 70, 2988–2992.

Kuzmann, E.; Homonnay, Z.; Nagy, S.; Nomura, K.; Mössbauer Spectroscopy. In: Vértes A.; Nagy S.; Klencsár Z.; Lovas R.G.; Rösch F. (Eds) *Handbook of Nuclear Chemistry*. Springer, Boston, MA, **2011**, 1381-1446

Kuzmann, E.; Stichleutner, S.; Sági, A.; Varga, L.K.; Havancsák, K.; Skuratov, V.; Homonnay, Z.; Vértes, A. Mössbauer study of FINEMET type nanocrystalline ribbons irradiated with swift heavy ions. *Hyperfine Interact.* **2012**, 207, 73-79

Kuzmann, E.; Stichleutner, S.; Sági, A.; Klencsár, Z.; Oshtrakh, M.I.; Semionkin, V.A.; Kubuki, S.; Homonnay, Z.; Varga, L.K. Mössbauer study of FINEMET with different permeability. *Hyperfine Interact.* **2013**, 219, 63–67

Kuzmann, E.; Stichleutner, S.; Pechousek, J.; Machala, L.; Vondrasek, R.; Smrcka, D.; Kouril, L.; Homonnay, Z.; Oshtrakh, M.I.; Mozzolai, A.; Skuratov, V.A.; Kudor, M.; Herczeg, B.; Varga, L.K. Change in magnetic anisotropy at the surface and in the bulk of FINEMET induced by swift heavy ion irradiation. *Nanomaterials* **2022**, 11, publikálás alatt.

McHenry, M.E.; Willard, M.A.; Laughlin, D.E. Amorphous and nanocrystalline materials for applications as soft magnets. *Prog. Mat. Sci.* **1999**, 44, 291–43.

Miglierini, M. Mossbauer-effect study of the hyperfine field distributions in the residual amorphous phase of Fe-Cu-Nb-Si-B nanocrystalline alloys. *J. Phys.: Condens. Matter* **1994**, 6 1431

Mozolai, A. Nagyenergiájú nehézion-besugárzás hatásának vizsgálata lágymágneses $\text{Fe}_{73,5}\text{Si}_{13,5}\text{Nb}_3\text{B}_9\text{Cu}_1$ ötvözeteken Mössbauer-spektroszkópia segítségével. Diplomamunka, ELTE Budapest, **2020**

Mössbauer, R.L. Kernresonanzfluoreszenz von Gammastrahlung in Ir^{191} . *Z. Physik* **1958**, 151, 124–143

Ohmori, C.; Paoluzzi, M.; Tamura, F.; Hasegawa, K.; Sugiyama, Y.; Shirakata, M.; Yoshii, M. J-PARC Contributions to LHC Injector. Liu project, CERN; **2019**

Oshtrakh, M.I.; Klencsár, Z.; Semionkin, V.A.; Kuzmann, E.; Homonnay, Z.; Varga, L.K. Annealed FINEMET ribbons: Structure and magnetic anisotropy as revealed by the high velocity resolution Mössbauer spectroscopy. *Mater. Chem. Phys.* **2016**, 180, 66–74

Peña Rodríguez, V.; Regalado J.F.; Baggio-Saitovitch E.; Passamani E.C. Nanocrystallization process in Finemet-type alloys followed by in situ ^{57}Fe Mössbauer spectroscopy. *Journal of Alloys and Compounds* **2004**, 379, 23–27

Rizza, G.; Dunlop, A.; Jaskierowicz, G.; Kopcewicz, M. Local crystallization induced in Fe-based amorphous alloys by swift heavy projectiles, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* **2004**, 226, 609–621

Sápi, A. A nagyenergiájú nehézion besugárzás és a feszültségteret hőkezelés hatásának vizsgálata a mágneses anizotrópiára FINEMET anyagokon a Mössbauer-spektroszkópia segítségével. Diplomamunka, ELTE, Budapest **2010**

Seitz, F.; Koehler, J. S. Displacement of Atoms during Irradiation. In F. Seitz-D. Turnbull (Eds) *Solid state physics: Advances in Research and Applications*, Vol. 2 New York, Academic Press **1956**

Stichleutner, S. A nagyenergiájú nehézion besugárzás hatása vastartalmú párolgatatott multirétegekben, elektrokémiai úton előállított bevonatokban, valamint Bi-2223 típusú szupravezetőkben. Doktori értekezés, ELTE TTK Doktori Iskola, ELTE TTK Kémiai Intézet, Budapest, **2009**

Varga, L.K.; Gercsi, Zs.; Kovacs, Gy.; Kakay, A.; Mazaleyrat, F. Stress-induced magnetic anisotropy in nanocrystalline alloys. *J. Magn. Magn. Mater.* **2003**, 254–255, 477–479

Y. Yoshizawa; K. Yamauchi, Effects of magnetic field annealing on magnetic properties in ultrafine crystalline Fe-Cu-Nb-Si-B alloys. *IEEE Trans. Magn.* **1989**, Vol. 25, pp. 3324–3326

Yoshizawa, Y.; Magnetic properties and microstructure of nanocrystalline Fe-based alloys. *J. Metast. Nanocryst. Mater.* **1999**, 1, 51-62

Yoshizawa, Y.; Oguma, S.; Yamauchi, K. New Fe-based soft magnetic alloys composed of ultrafine grain structure. J. Appl. Phys. **1988**, 64, 6044

Zemčík, T.; Jirásková, Y.; Kočová, M. On the intergranular phase in nanocrystalline FeCuNbSiB alloys. J. Mater. Sci. Lett. **1992**, 11, 1298–1300

Zhang, Y.; Hono, K.; Inoue, A.; Sakurai, T. Partitioning of Si in a Fe₈₇Zr₇Si₄B₂ nanocrystalline soft magnetic alloy. Applied Physics Letters 69, **1996**, 2128

8. Köszönetnyilvánítás

Szeretnék őszinte köszönetet mondani témavezetőmnek, Prof. Dr. Kuzmann Ernőnek, amiért irányt mutatott a dolgozati témám kiválasztásában. Nagy szakmai tudásával és gyakorlati tanácsaival segítette munkám létrejöttét. A tőle kapott tudás és ösztönzés nagy hasznomra vált. Köszönöm Dr. Stichleutner Sándornak a minták besugárzásának megvalósítását és hogy hasznos tanácsaival segítette a munkámat.

Szeretném megköszönni Herczeg Bencének, hogy saját idejéből áldozva segített a méréseim elkészítésében.

Továbbá köszönöm a Magkémiai Laboratórium minden dolgozójának segítőkészségét, és hogy hozzájárultak a dolgozat létrejöttéhez.