

2. Ахманов С. А., Сухоруков А. П., Хохлов Р. В. О самофокусировке и самоканализации световых пучков в нелинейной среде.— ЖЭТФ, 1966, 50, 1537—1539.
3. Ulrich P. B., Wallace J. Propagation characteristics of collimated, pulsed laser beams through an absorbing atmosphere. J. Opt. Soc. Am., 1973, 63, 8—12.
4. Выслоух В. А., Кандидов В. П. Метод конечных элементов в задаче о тепловом самовоздействии световых пучков. Тр. VII Всес. симп. по дифр. и распростр. волн. Ростов-на-Дону, М., 1977, 274—277.

Поступила в редакцию
24.05.78

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1980, Т. 21, № 2

УДК 548.539.1.043

В. Г. ЗУБОВ, А. П. ШТЫРКОВА, Т. М. ГЛУШКОВА, М. М. ФИРСОВА

ДЕЙСТВИЕ γ -ОБЛУЧЕНИЯ НА ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПРИРОДНОГО КВАРЦА

Известно, что при облучении в реакторе объекты подвергаются действию как нейтронов, так и сопутствующего γ -излучения. С ростом дозы нейтронов возрастает также и доза γ -квантов. Оба вида радиации, создавая различные дефекты в облучаемых материалах, приводят к изменению их физических свойств.

Настоящая работа является продолжением исследований, предпринятых с целью выяснения роли отдельных компонент реакторного облучения в радиационном изменении диэлектрических свойств кварца. Ранее мы сообщили [1] об измерении диэлектрической проницаемости ϵ и миграционных потерь $\text{tg } \delta$ образцов кварца, облучавшихся в реакторе флюенсом $\Phi_n = 2 \cdot 10^{18}$ н/см² (сопутствующее γ -излучение $\Phi_\gamma \sim 10^{10}$ Р).

В данной статье излагаются результаты исследования температурно-частотных зависимостей ϵ и $\text{tg } \delta$ кварца, облученного только γ -квантами ⁶⁰Со, что является своеобразным моделированием действия γ -компоненты в реакторе. Облучение проводилось при температуре 20°С в интервале доз $5 \cdot 10^5$ Р — $2 \cdot 10^9$ Р. Использовались пластинки толщиной 1—2 мм z-среза кварца Уральского месторождения. Электрические параметры измерялись на мосте переменного тока Р571; платиновые электроды наносились на образцы катодным напылением. Причем предварительно были сняты спектры поглощения в области длин волн 200—800 нм на спектрофотометре *Specord*. Облученный кристалл подвергался серии температурных измерений — циклов. Каждый цикл представлял собой постепенный нагрев образца с остановками для измерений его параметров при определенных температурах, заканчивался он отжигом в течение 4—5 часов при максимальной температуре, достигнутой в данном цикле.

Исследования показали, что облучение вызвало характерную для естественного кварца дымчатую окраску и значительное изменение электрических параметров. На рис. 1 приводятся графики температурной зависимости ϵ и $\text{tg } \delta$ в интервале частот 0,5—10 кГц образца,

облученного дозой $2 \cdot 10^9$ Р (а, б). Здесь же для сравнения показано исходное состояние необлученного контрольного образца (в, г). Отметим следующие факты, характеризующие влияние γ -облучения на диэлектрические свойства кварца:

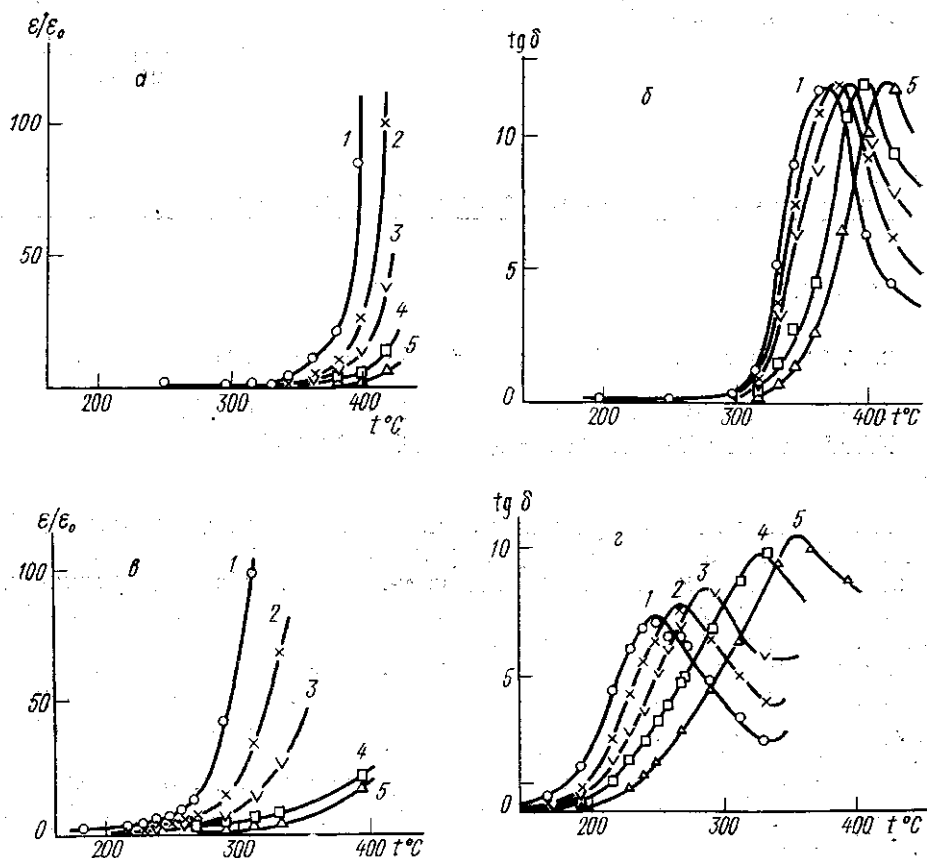


Рис. 1. Температурная зависимость относительной диэлектрической проницаемости ϵ/ϵ_0 (ϵ_0 — проницаемость при 20°C) и диэлектрических потерь $\text{tg } \delta$ образца, облученного дозой $2 \cdot 10^9$ Р (а, б), и необлученного контрольного образца (в, г) на частотах: 1 — 0,5; 2 — 1; 3 — 2; 4 — 5; 5 — 10 кГц.

1) в облученных образцах начало заметного роста диэлектрической проницаемости ϵ и положение максимума $\text{tg } \delta$ сдвигаются в область более высоких температур: например, для частоты 0,5 кГц максимум $\text{tg } \delta$ сдвинулся на 115° по отношению к исходному положению;

2) пики $\text{tg } \delta$ после облучения несколько сужаются, а высота их возрастает примерно в 1,5 раза;

3) релаксационные пики в необлученном образце не являются строго симметричными по форме, так как они проявляются на фоне потерь сквозной проводимости, возрастающих экспоненциально с температурой. Радиация вызывает уменьшение сквозной проводимости, что позволило нам фиксировать пики $\text{tg } \delta$ в области более высоких температур;

4) облучение уменьшает диэлектрическую дисперсию, что проявляется в более компактном расположении релаксационных пиков по частотам.

С целью выявления динамики дефектов, вызванных облучением, производились последовательные отжиги при температурах 420, 560 и 720° С. Влияние изотермического отжига иллюстрируется рис. 2, где приведены графики $\text{tg } \delta(t^\circ)$ для частоты 0,5 кГц в различных температурных циклах (облучение дозой $2 \cdot 10^9$ Р). Отжиг вызывает постепенное перемещение характерных точек кривых $\varepsilon(t^\circ)$ и $\text{tg } \delta(t^\circ)$ в обратную сторону по шкале температур, т. е. при отжиге проявляется тенденция облученного образца вернуться в исходное состояние. Однако, даже отжиг при 720° С не возвращает пик $\text{tg } \delta$ в исходное состояние ни по высоте, ни по положению. Отметим, что после отжига при 720° С пик диэлектрических потерь всех образцов, облученных различными дозами, наблюдался при одной и той же темпе-

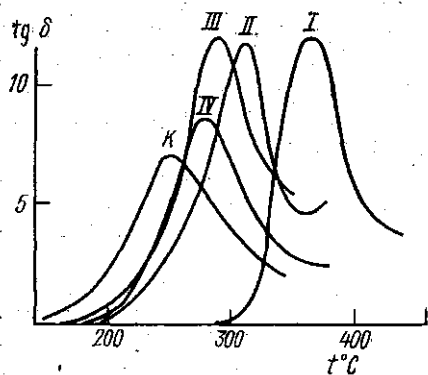


Рис. 2. Температурная зависимость $\text{tg } \delta$ образца необлученного (K) и облученного дозой $2 \cdot 10^9$ Р для частоты 0,5 кГц в разных температурных циклах: I — цикл после облучения; II, III, IV — после отжига соответственно при 420°; 560° и 720° С

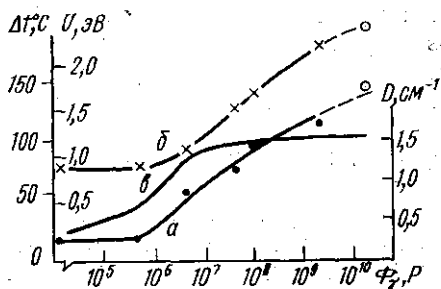


Рис. 3. Зависимость от дозы γ -облучения: абсолютного температурного сдвига Δt ($^\circ\text{C}$) максимума $\text{tg } \delta$ (a), энергии активации U процесса электропроводности (б); оптического поглощения D в видимой области в полосе $A_2[5]$ (в); \circ — облучение в реакторе

ратуре и имел одинаковую высоту. Такой же отжиг необлученного образца, проведенный для контроля, не вызвал изменений ни в высоте, ни в положении пика $\text{tg } \delta$ на температурной шкале.

Аналогичные вышеописанным измерения были проведены с образцами, облученными меньшими дозами. Дозовая зависимость абсолютного сдвига пика $\text{tg } \delta$ приведена на рис. 3 (кривая a), из которого видно, что этот сдвиг монотонно изменяется с дозой облучения (см. также [2]). На этом же рисунке (кривая б) представлена дозовая зависимость энергии активации U процесса электропроводности, которая была рассчитана по частотным сдвигам пиков $\text{tg } \delta$. Здесь же показаны значения сдвига максимума $\text{tg } \delta$ и энергии активации для образца, облученного в реакторе (точка \circ , которая хорошо ложится на продолжение кривой, полученной для чистого γ -облучения). Сопоставление этих фактов с результатами работы [2] дает основание сделать предположение о том, что основную роль в изменении диэлек-

трических свойств кварца при реакторном облучении может играть γ -компонента, по крайней мере в области доз 10^{15} — 10^{18} н/см².

Обсуждение результатов. На основании анализа спектров оптического поглощения и ЭПР в [3] была предложена следующая модель действия радиации на кристаллический кварц. Одним из основных видов ростовых нарушений в кварце является наличие в нем дефектных комплексов $[\text{AlO}_4]^-/\text{M}^+$, возникающих благодаря изоморфному замещению в тетраэдрах SiO_4 четырехвалентного Si^{4+} на трехвалентный Al^{3+} , причем компенсация заряда осуществляется положительными ионами M^+ (Li, Na, H и др.). Образующиеся под действием ионизирующих излучений дырочные центры мигрируют в кристаллической решетке и, закрепляясь в глубоких потенциальных ямах дефектного комплекса, нейтрализуют его, создавая таким образом центры окраски $[\text{AlO}_4]^0$. Именно с этими центрами связывается появление в облученном кварце как полос поглощения в видимой области A_1 — 620 нм и A_2 — 470 нм, так и небольшие изменения в оптической активности [4]. С ростом продолжительности облучения плотность окраски увеличивается вплоть до дозы $\sim 10^7$ Р, начиная с которой в дозовой зависимости оптического поглощения наблюдается тенденция к насыщению (рис. 3, кривая «в»), что обусловлено наличием в образцах конечного числа дефектных тетраэдров, постепенно с ростом дозы трансформирующихся в дырочные центры окраски [5]. Наличие насыщения свидетельствует о том, что доза $\sim 10^7$ Р переводит в новое состояние все дефектные комплексы и, таким образом, ионизирующие излучения лишь «проявляют» уже имеющиеся в кристаллах ростовые дефекты, не создавая значительных нарушений в самой кристаллической матрице [6].

Как известно, процесс электропроводности и диэлектрических потерь в кварце имеет примесный характер и осуществляется ионами-компенсаторами того же дефектного комплекса $[\text{AlO}_4]^-/\text{M}^+$. Следовательно, можно ожидать, что характер радиационных изменений оптических и диэлектрических свойств будет идентичным. Действительно, тщательно проведенные исследования диэлектрических потерь при низких температурах, так называемых деформационных потерь [8, 9], показали, что изменение диэлектрических параметров облученных образцов находится в полном согласии с процессом образования дырочных центров окраски, а именно: ионизирующая радиация вызывает появление нового пика диэлектрических потерь при более низкой температуре, исходный же пик по-прежнему наблюдается на старом месте. По мере накопления поглощенной дозы старый пик уменьшается, а новый возрастает, и этот процесс заканчивается при дозе, вызывающей насыщение в изменении оптического поглощения. Отжиг изменений деформационных потерь происходит при той же температуре, что и отжиг центров окраски (300 — 400°C), т. е. наблюдается полная корреляция между центрами окраски и деформационными потерями.

Исследуемые нами высокотемпературные миграционные потери обусловлены движением тех же примесных щелочных ионов в кварце. Однако наши эксперименты показали, что радиационные изменения миграционных потерь носят совершенно иной характер, чем потери при низких температурах. Так, например, действие радиации на миграционные потери проявляется в постепенном изменении с дозой температуры максимума $\text{tg } \delta$, т. е. в передвижении пика в область более высоких температур, а не в появлении и постепенном возрастании нового пика и соответственном уменьшении старого, как это имеет место в случае деформационных потерь. Отсутствует также аналогия

в изменении миграционных потерь и оптического поглощения. Это явствует из следующих экспериментальных данных: 1) количество центров окраски насыщается (при дозе $\sim 10^7$ Р), перемещение же пика $\text{tg } \delta$ (и начала роста ϵ) не стремится к насыщению вплоть до максимальной в наших измерениях дозы $2 \cdot 10^9$ Р (рис. 3, кривые *a* и *b*); 2) при термообработке облученных образцов полосы поглощения в видимой области исчезают при температуре отжига $300^\circ\text{--}400^\circ\text{C}$, т. е. с точки зрения оптических свойств образец возвращается в исходное состояние при этих температурах. Электрические же параметры (ϵ , $\text{tg } \delta$) не восстанавливаются даже при гораздо более высоких температурах отжига.

Вышеизложенное дает возможность предположить, что при γ -облучении основную роль в наблюдаемых изменениях диэлектрических свойств при высоких температурах играет изменение условий миграции электрически активных частиц (загромождение структурных каналов ионами, появление новых дефектных мест—ловушек), о чем свидетельствует отмеченное нами уменьшение сквозной проводимости и возрастание энергии активации диэлектрической релаксации (см. рис. 3, кривая *b*). Итак, ионизирующее облучение самым существенным образом изменяет как величину, так и конфигурацию внутрикристаллического поля, причем этот процесс, возможно, и не будет иметь насыщения вплоть до доз облучения, при которых начнутся структурные изменения кристаллической решетки кварца. Такая модель позволяет объяснить отсутствие аналогии и при отжиге электрических и оптических свойств. Рекомбинация центров окраски, обусловленная ионизацией дефектного центра $[\text{AlO}_4]^-$, происходит на электронном уровне и поэтому имеет место при не слишком высоких температурах $\sim 300^\circ\text{C}$. Но для полного отжига электрических свойств необходимо также полное восстановление в первоначальном виде всех дефектных комплексов $[\text{AlO}_4]^-/\text{M}^+$, что не может осуществиться при той же температуре, так как возвращение ионов-компенсаторов, захваченных в глубокие ловушки благодаря деформации внутрикристаллического поля, требует значительно больших энергий.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Штыркова А. П., Глушкова Т. М. Действие реакторного облучения на электрические характеристики кристаллического кварца.—Вестн. Моск. ун-та. Физ., астрон., 1976, 17, № 5, 554—559.
2. Фотченков А. А., Колодиева С. В. Об особенностях воздействия проникающей радиации на электрические свойства кристаллов кварца.—Кристаллография, 1973, 18, вып. 3, 584—589.
3. O'Brien M. C. M. The structure of color centres in smoky quartz.—Proc. Roy. Soc. (L), 1955, A231, 404—414.
4. Buchholz H. Die quantitative Bestimmung von Gitterstörung aus ihrem Einfluss auf die Zirkularpolarisation des Quarzes.—Z. Naturforsch., 1966, 21a, 316—323.
5. Семенов К. П., Фотченков А. А. Эффективность воздействия на кварц различных видов излучения.—Кристаллография, 1977, 22, вып. 3, 571—578.
6. Вахидов Ш. А., Гасанов Э. М., Самойлович М. И., Яркулов У. Радиационные эффекты в кварце. Ташкент, 1975, с. 60.
7. Nelson C. M., Crawford J. H. Optical absorption in irradiated quartz and fused silica.—J. Phys. Chem. Solids, 1960, 13, 296—305.
8. Stevels J. M., Volger J. Further experimental investigations on the dielectric losses of quartz crystals in relation to their imperfections.—Phil. Res. Rep., 1962, 17, 283—314.
9. Nowick A. S., Stanley M. W. Dielectric relaxation due to the Al—Na defect in α -quartz.—J. Appl. Phys., 1969, 40, 4995—5001.