

УДК 621.039.4.548.0:535

# ПРИРОДА И МЕХАНИЗМ ОБРАЗОВАНИЯ $\gamma$ -НАВЕДЕННЫХ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ С ПОЛОСой ОПТИЧЕСКОГО ПОГЛОЩЕНИЯ 665 нм В КВАРЦЕВЫХ СТЕКЛАХ ТИПА КС-4В и КИ

Исламов А.Х., Ибрагимова Э.М., Файзуллаев Б.С., Хайитбоев И.А., Хайитов И.А.  
(ИЯФ АН РУз, г. Ташкент)

Изучение воздействия радиации на оптическое пропускание оксидных материалов ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ) в спектральной области 170—2000 нм связано с возможностью их применения в системах регистрации оптического излучения плазмы с минимальными потерями в термоядерных реакторах. В последние годы интенсивно изучали оптическое поглощение и люминесценцию дефектов, индуцированных ионизирующим излучением, в кварцевых стеклах марки КС-4В и КУ-1, предлагаемых в качестве оптических элементов систем (окошки, линзы и волоконные световоды).

Настоящая работа посвящена выяснению природы, механизма образования и стабильности радиационного дефекта, поглощающего оптическое излучение в области 660—680 нм, в кварцевых стеклах марки КС-4В и КИ, которые отличаются содержанием металлических примесей.

**Эксперимент.** Исследованы кварцевые стекла, синтезированные по технологии [1, 2]. Стекло марки КС-4В получено из сверхчистого синтетического диоксида кремния  $\text{SiO}_2$ , содержание ОН-групп составляет  $<0,1 \text{ млн}^{-1}$ , металлических примесей  $<0,1 \text{ млн}^{-1}$  [2, 3]. Стекло марки КИ получено из кристаллов натурального кварца с содержанием металлических примесей  $<10 \text{ млн}^{-1}$ . Из стекол вырезали плоскопараллельные пластинки длиной и шириной по 10 мм, толщиной 3 мм, поверхности которых полировали.

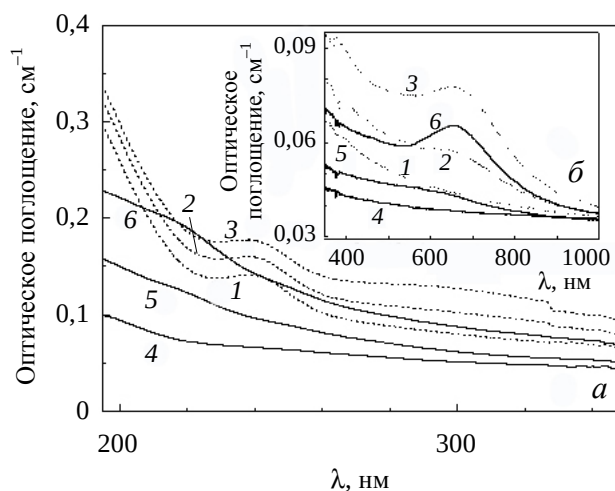
Образцы облучали  $\gamma$ -квантами радиоизотопного источника  $^{60}\text{Co}$  на гамма-установке ИЯФ АН РУз при 310 К в интервале дозы 30— $10^5$  Гр при мощности дозы 2,5 Гр/с. Для исследований термостабильности радиационных дефектов образцы также облучали при температуре жидкого азота (77 К), льда (273 К) и 310 К при тех же дозе и мощности.

Спектры оптического поглощения измеряли на спектрофотометре LAMBDA-35 (США) в спектральной области 195—1100 нм через 3 мин

после  $\gamma$ -облучения при 77 или 300 К в целях регистрации вклада нестабильных центров. Спектры возбуждения и фотолюминесценции снимали при 300 К на спектрофотометре Fluorescence spectrophotometer MPF-2A (Япония) в области 200—800 нм.

**Результаты и их обсуждение.** В спектрах оптического поглощения необлученных образцов стекол марки КС-4В наблюдается известная полоса поглощения 250 нм (рис. 1, а, кривая 4), в которой возбуждается полоса фотолюминесценции 287 нм, т.е. обе полосы связаны с известным кислорододефицитным центром [4, 5]. В отличие от образцов марки КУ-1 и КС-4В в необлученных стеклах марки КИ обнаруживается полоса 242 нм (см. рис. 1, а, кривая 1), возбуждающая полосу фотолюминесценции 390 нм, которая связана с известным германий-кислорододефицитным центром ( $\equiv\text{Ge}-\text{Si}\equiv$  или  $\equiv\text{Ge}-\text{Ge}\equiv$ ) [3, 6].

В спектрах образца стекла КИ при минимальной дозе  $\gamma$ -облучения 30 Гр появляется полоса поглощения 300 нм, обусловленная радиационно-индуцированным центром  $=\text{Al}^+$  (двухкоординированный алюминий, захвативший электрон) [7, 8] (см. рис. 1, а, кривая 2). Кроме

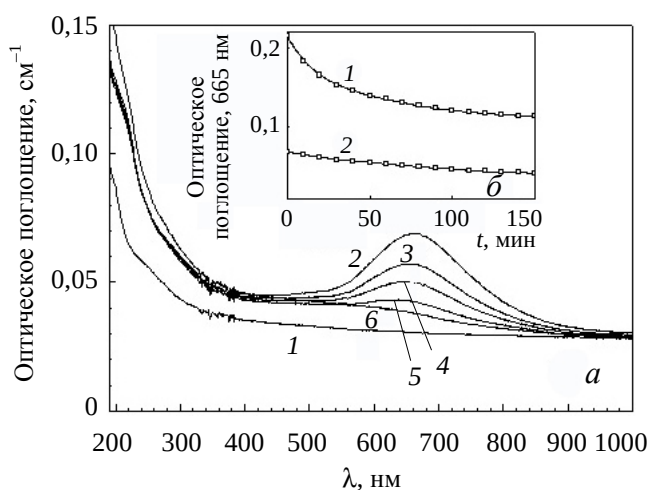


Р и с. 1. Исходный спектр поглощения образцов кварцевого стекла КИ (1) и КС-4В (4) и измеренный при 300 К после облучения дозой 30 (2, 5), 500 (3),  $7,4 \cdot 10^3$  Гр (6) в ультрафиолетовой (а) и видимой области при 310 К (б)

того, в видимой области спектра появляется полоса 665 нм (см. рис. 1, б, кривая 2). С увеличением дозы до 500 Гр обе полосы возрастают (см. рис. 1, а, б, кривая 3).

В отличие от стекол марки КИ облучение дозой 30 и 500 Гр не наводит УФ-полосу 300 нм в образце КС-4В, однако при дозе 30 Гр полосу поглощения 665 нм не видно на фоне слабого дополнительного поглощения в широкой области 350—800 нм (см. рис. 1, б, кривая 5). При дозе 500 и  $7,4 \cdot 10^3$  Гр она наблюдается (см. рис. 1, б, кривая 6). Известно, что полоса поглощения 620 нм связана с дефектом немоستيкового атома кислорода, но в обоих образцах стекол КС-4В и КИ ее не видно. Более чувствительный метод фотolumинесценции позволил наблюдать полосу фотolumинесценции 650 нм в обоих образцах даже при минимальной дозе 30 Гр, которая возбуждается в полосе 263 нм и обусловлена дефектом — немоستيковым атомом кислорода [9]. Таким образом, в исследованных образцах при  $\gamma$ -облучении, кроме немоستيкового атома кислорода, появляется другой дефект, ответственный за полосу 665 нм. Поскольку эта полоса оказалась нестабильной при комнатной температуре и через сутки исчезала, была поставлена задача детального исследования кинетики ее релаксации со съемкой спектров через каждые 10 мин [10].

На рис. 2, а кривой 1 показан спектр необлученного образца КС-4В, кривыми 2—6 — выборочные спектры поглощения, снятые при

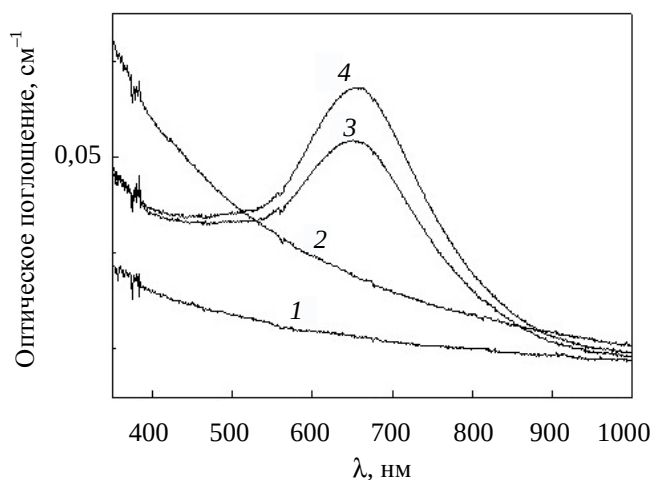


Р и с. 2. Кинетика релаксации исходного (1) и измеренного через 3 мин при 300 К после облучения дозой  $7,5 \cdot 10^3$  Гр (2), выдержки 40 (3), 80 (4), 140 мин (5), 20 ч (6) спектра поглощения (а) и временная зависимость полосы поглощения 665 нм в образцах КИ (1) и КС-4В (2) (б)

300 К в разное время после облучения дозой  $7,4 \cdot 10^3$  Гр. На рис. 2, б показана кинетика интенсивности максимума полосы 665 нм образца стекла КИ (кривая 1) и КС-4В (кривая 2) с экспериментальными точками через каждые 10 мин. Кривая 2 на рис. 2, а показывает спектр, измеренный через 3 мин после облучения. С увеличением времени до 40 мин полоса 665 нм уменьшается примерно на 30% (см. рис. 2, а, кривая 3), после 3 ч почти исчезает (кривая 6). В интервале 3—20 ч спектры почти одинаковы: остается только неэлементарная широкая стабильная полоса, которая, возможно, перекрывается полосой поглощения 620 нм немоستيкового атома кислорода и 550 нм алюмо-дырочного центра (см. рис. 2, а, кривая 6). В то же время в области  $\leq 500$  нм не наблюдается изменений (см. рис. 2, а, кривые 2—6).

На рис. 2, б видно, что полоса поглощения 665 нм стекла КИ уменьшается быстрее (кривая 1), чем стекла КС-4В (кривая 2). В то же время полоса фотolumинесценции 650 нм немоستيкового атома кислорода не изменилась, что свидетельствует об отсутствии переноса заряда между центрами окраски полосы 665 нм и немоستيкового атома кислорода полосы 620 нм.

Оптическую плотность измеряли в максимуме полосы 665 нм при разной температуре  $\gamma$ -облучения образцов КС-4В одинаковой дозой  $7,4 \cdot 10^3$  Гр (рис. 3, кривые 2—4). Облучение при 77 К не приводит к образованию полосы 665 нм (кривая 2), но при нагреве до 273 К (кривая 3) она появляется и растет, если облучать при 310 К (кривая 4). Такая же температурная зави-



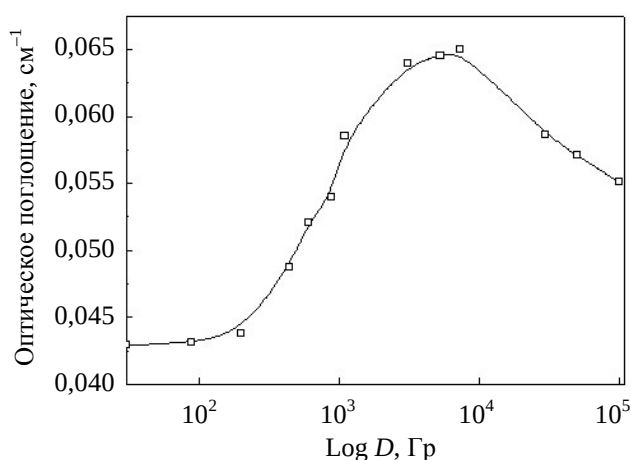
Р и с. 3. Исходный спектр поглощения кварцевого стекла КС-4В при 300 К (1) и измеренный после облучения дозой  $7,3 \cdot 10^3$  Гр при 77 К (2), 273 К (3), 310 К (4)

симось получена и для полосы поглощения 540 нм алюмодырочного центра в стекле КИ при рентгеновском облучении дозой  $10^4$  Гр при  $\geq 240$  К, однако авторы не наблюдали полосу поглощения 665 нм [9]. Это, возможно, связано с тем, что в стекле КИ при этой дозе облучения в спектре преобладает полоса поглощения 540 нм алюмодырочного центра [9, 10].

Показано, что световой поток в области полосы 680 нм при 77 К в течение 1 ч образца КС-4В, предварительно облученного дозой  $3,5 \cdot 10^3$  Гр при 310 К, не приводит к существенному фотообесцвечиванию полосы 665 нм. После 20 мин отжига при 323 К образцов КС-4В, облученных дозой  $1,1 \cdot 10^3$  Гр при 310 К, полоса 665 нм сильно уменьшается. Аналогичное наблюдается в спектре поглощения, регистрированном через 3 и 20 ч выдержки при 300 К после облучения дозой  $7,5 \cdot 10^3$  Гр при 310 К (см. рис. 2, кривая 6).

Полоса фотолюминесценции 650 нм немостикового атома кислорода при возбуждении в области 263 нм, наведенная облучением в интервале дозы  $(1,1—7,5) \cdot 10^3$  Гр при 310 К, почти не изменилась после выдержки 20 ч при 300 К, после отжига 20 мин при 323 К. Наведенное поглощение алюмодырочного центра и немостикового атома кислорода, а также фотолюминесценция немостикового атома кислорода полностью отжигаются при  $\geq 673$  К, и спектр исходного образца полностью восстанавливается.

На рис. 4 видно, что оптическая плотность полосы 665 нм в образце КС-4В до дозы  $4,4 \cdot 10^2$  Гр медленно растет, в интервале



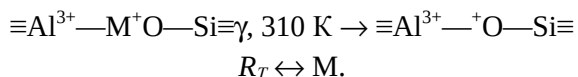
Р и с. 4. Дозовая зависимость полосы оптического поглощения 665 нм стекол КС-4В, облученных  $\gamma$ -квантами  $^{60}\text{Co}$  при 310 К

$4,4 \cdot 10^2—3,1 \cdot 10^3$  Гр наблюдается быстрый рост, в интервале  $(3,1—7,4) \cdot 10^3$  Гр она выходит на насыщение, затем при  $>7,4 \cdot 10^2$  Гр начинает уменьшаться. В интервале облучения  $5,3 \cdot 10^3—10^4$  Гр при 310 К в стекле КИ преобладает в основном, полоса поглощения в области 540—550 нм [10]. В отличие от стекла КИ в образце КС-4В при дозе  $7,4 \cdot 10^3$  Гр преобладающей является полоса поглощения 665 нм (см. рис. 1, б, кривая 6).

Следует отметить отсутствие полосы поглощения 665 нм в спектрах КС-4В после облучения электронами (1,8 МэВ, 100 МГр, 308 К), протонами (12,6 МэВ, 6,7 МГр, 303 К) [11, 12]. Причина, по-видимому, в том, что уже после облучения  $\gamma$ -квантами (1,25 МэВ,  $10^4$  Гр, 310 К) этот центр разрушается.

Эксперименты показывают, что центры окраски, связанные с полосой поглощения 665 нм, наблюдаются в стеклах типа КИ и КС-4В, синтезированных в вакууме, которые отличаются от стекла КУ-1 наличием примеси алюминия и щелочных металлов. Полоса оптического поглощения 665 нм (см. рис. 1, б, кривая 2), наблюдаемая в стекле КИ уже при минимальной дозе  $\gamma$ -облучения 30 Гр, свидетельствует о примесной природе этого дефекта и обуславливается технологическими примесями металлов. Содержание примеси алюминия и щелочных металлов существенно выше в образцах КИ ( $<10$  млн<sup>-1</sup>), чем в КС-4В (0,1 млн<sup>-1</sup>). Поэтому более высокая концентрация примесных центров окраски наблюдается в образце КИ (см. рис. 1, б, кривые 2, 3) при меньшей дозе облучения 30 Гр по сравнению с КС-4В (кривая 6). Полоса оптического поглощения 550 нм, наблюдаемая в образцах КС-4В при 300 К (см. рис. 2, кривая 6) и в КИ [9], связана с известным алюмодырочным центром, полоса оптического поглощения 665 нм, по-видимому, с другими центрами окраски, которые ранее [10] предполагались обусловленными примесями алюминия и щелочных металлов [9, 13]. Различия между этими центрами окраски (полосами 550 и 665 нм) могут быть связаны с изменением расположения ионов компенсаторов заряда (щелочных металлов) относительно алюминиевых центров окраски. По-видимому, такие изменения происходят в ближайшем окружении центра, т.е. в ближнем порядке сетки стекла, которые непосредственно влияют на стабильность

центров окраски. Предполагаем, что в образовании центров окраски с полосой 665 нм (см. рис. 1, б) при 300 К с кинетикой релаксации (см. рис. 2, б, кривые 1, 2) участвуют щелочные металлы  $M^+$  согласно реакции



Эффективное образование центров оптического поглощения 665 нм после  $\gamma$ -облучения при 310 К по сравнению с 77 и 273 К объясняется тем, что при разрушении связи  $M^+O-Si\equiv$  освободившийся щелочной металл  $M^+$  становится подвижным при 300 К и выше и его зона неустойчивости  $R_T$  располагается в окрестности примесного  $\equiv Al^{3+}$  центра в сетке стекла (см. рис. 3, кривые 4, 3). Это объясняет наблюдаемую нестабильность полосы оптического поглощения 665 нм при 300 К (см. рис. 2, а, б) и ее стабильность при 77 и 273 К, так как после  $\gamma$ -облучения при 310 К и последующей выдержки при 77 и 273 К в течение 4 ч полоса оптического поглощения 665 нм не уменьшалась. При облучении при 310 К подвижные щелочные металлы остаются в пределах зоны неустойчивости в окрестности алюминия и энергии, полученной щелочным металлом при  $\geq 300$  К, достаточно для преодоления потенциального барьера в зоне  $R_T$  и восстановления исходной связи  $\equiv Al^{3+}-M^+O-Si\equiv$  в сетке стекла. Кинетика релаксации поглощения полосы 665 нм определяется диффузией щелочных металлов в зоне неустойчивости  $R_T$  (см. рис. 2, б). При 300 К необходимо 3 ч для выхода щелочного иона за пределы зоны  $R_T$  (см. рис. 2, а, кривая 6). Преодоление потенциального барьера и выход металла из зоны  $R_T$  происходят при температуре отжига 323 К в течение 10 мин.

Действительно, в спектре поглощения, зарегистрированном через 3 и 20 ч после облучения дозой  $7,5 \cdot 10^3$  Гр (см. рис. 2, кривая 6) и отжига образца в течение 10 мин при 323 К, наблюдаются другие стабильные центры, связанные с полосами 550 нм алюмодырочного центра и 630 нм немостикового атома кислорода. Эти центры окраски полностью отжигаются при  $\geq 673$  К [9]. Предполагается, что полосы 665 и 550 нм связаны с образованием разных дефектных комплексов алюминий—щелочной металл

в зависимости от расположения и заряда щелочных металлов.

На рис. 4 показана снятая по 12 точкам в интервале дозы 30— $10^5$  Гр дозовая зависимость концентрации центров, связанных с полосой 665 нм, для образца КС-4В. Максимальная концентрация центров  $\equiv Al^{3+}-^+O-Si\equiv$   $R_T \leftrightarrow M$  наблюдается в узком интервале дозы 3100—7400 Гр, выше которого преобладают процесс разрушения этих центров и ослабление полосы 665 нм.

В настоящей работе исследован механизм образования радиационного дефекта, поглощающего в области 660—680 нм, в кварцевых стеклах марки КС-4В и КИ, которые отличаются содержанием металлических примесей, и его отжиг. Полоса 665 нм связана с наличием примесей щелочных металлов и алюминия в обоих типах стекол. Ее интенсивность коррелирует с их концентрацией. Щелочной металл и алюминий образуют сложный примесный комплекс  $\equiv Al^{3+}-M^+O-Si\equiv$ , отвечающий за образование центра окраски с полосой 665 нм при  $\gamma$ -облучении. Его образование связано с тем, что при облучении даже сравнительно малой дозой 30 Гр при 310 К подвижные щелочные металлы находятся в пределах зоны неустойчивости в окрестности алюминия  $\equiv Al^{3+}$  и энергии, полученной щелочным металлом в этих условиях, достаточно для преодоления потенциального барьера в зоне неустойчивости и восстановления исходной связи  $\equiv Al^{3+}-M^+O-Si\equiv$  в сетке стекла. Полоса полностью отжигается при 323 К. Кинетика накопления центров окраски с полосой 665 нм в КС-4В при дозе  $>4 \cdot 10^2$  Гр связана с разрывом связи  $M^+O-Si\equiv$  около алюминия  $\equiv Al^{3+}$ .

Если применять стекло КС-4В в системе контроля плазмы реактора ИТЭР, то  $\gamma$ -индуцированные полосы поглощения 550, 620 и 665 нм при указанной дозе могут привести к искажению диагностируемых сигналов из-за потери пропускания в спектральной области 500—700 нм. Поскольку прозрачность стекла КУ-1 в этой области не изменяется, его можно использовать в качестве окошка в видимой области спектра.

Работа выполнена в рамках фундаментального гранта Ф2-ФА-Ф118 Комитета по координации развития науки и технологий Республики Узбекистан.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Vayakis G., Hodgson E., Voitsenya V. e.a. Generic diagnostic issues for a burning plasma experiment. — *Fus. Sci. Technol.*, 2008, v. 53, p. 699—750.
2. Vukolov Yu. Radiation effects in window materials for ITER diagnostics. — *Fus. Engng Design*, 2009, v. 84, № 7—11, p. 1961—1963.
3. Leon M., Martin P., Ibarra A. e.a. Gamma irradiation induced defects in different types of fused silica. — *J. Nucl. Mater.*, 2009, № 386—388, p. 1034—1037.
4. Амосов А.В., Петровский Г.Т. Дефекты типа «кислородная вакансия» в кварцевых стеклах. — *ДАН СССР*, 1983, т. 268, с. 66.
5. Блинкова Г.Б., Вахидов Ш.А., Исламов А.Х. и др. Подпороговое дефектообразование в кварцевых стеклах при воздействии ионизирующим излучением. — *Физика и химия стекла*, 1988, т. 14, № 14, с. 494—500.
6. Alessi A., Agnello S., Sporea D. e.a. Formation of optically active oxygen deficient centers in Ge-doped SiO<sub>2</sub> by  $\gamma$ - and  $\beta$ -ray irradiation. — *J. Non-Crystal. Sol.*, 2010, v. 356, p. 275—280.
7. Амосов А.В., Малышкин С.Ф. Радиационные центры окраски, ответственные за полосу поглощения 300 нм в спектрах кварцевых стекол. — *Физика и химия стекла*, 1982, т. 8, № 1, с. 88—92.
8. Блинкова Г.Б., Вахидов Ш.А., Нуритдинов И. и др. Локальное изменение структуры кварцевого стекла при облучении и высокотемпературной обработке. — Там же, 1999, т. 25, № 6, с. 660—663.
9. Силин А.Р., Трухин А.Н. Точечные дефекты и элементарные возбуждения в кристаллическом и стеклообразном SiO<sub>2</sub>. Рига: Зинатне, 1985. 244 с.
10. Islamov A.Kh., Salikhbaev U.S., Ibragimova E.M. e.a. Efficiency of generation of optical centers in KS-4V and KU1 quartz glasses at neutron and gamma irradiation. — *J. Nucl. Mater.*, 2013, № 443, p. 393—397.
11. Morono A., Vila R., Hodgson E. KU1 and KS-4V quartz glass lenses for remote handling and diagnostic optical transmission systems. — *Ibid.*, 2004, № 329—333, p. 1438—1441.
12. Constantinescu B., Bugoi R., Hodgson E. e.a. Studies on proton irradiation-induced modifications of KU1 and KS-4V quartz glasses ultraviolet transmission properties. — *Ibid.*, 2007, № 367—370, p. 1048—1051.
13. Trukhin A.N., Jansons J.L., Truhins K. Luminescence of silica glass containing aluminum oxide. — *J. Non-Crystal. Sol.*, 2004, v. 347, p. 80—86.

Поступила 10.09.15

В окончательной редакции 15.05.17

УДК 621.039.7.004.031

## ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ИНФОРМАЦИОННЫХ ТЕХНОЛОГИЙ НА ЗАКЛЮЧИТЕЛЬНОЙ СТАДИИ ЖИЗНЕННОГО ЦИКЛА РЕАКТОРНЫХ УСТАНОВОК

Тихоновский В.Л., Чуйко Д.В. (АО «НЕОЛАНТ», г. Москва),  
 Былкин Б.К. (НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)

Эффективность демонтажных работ и безопасность персонала, населения и окружающей среды на заключительной стадии жизненного цикла реакторных установок разного назначения характеризуется следующими особенностями:

наличие источников ионизирующего излучения (эксплуатационные радиоактивные отходы, радиоактивные конструкции и сооружения — радиационный фактор);

изменение структуры объекта в период эксплуатации и износ основного оборудования и систем;

смена поколений обслуживающего персонала;

необходимость подготовки персонала к выполнению принципиально новых демонтажных работ.

На заключительной стадии жизненного цикла реакторной установки корректные решения могут быть приняты при наличии необхо-

димой для этого информации. Важно не только наличие информации само по себе, но и возможность ее своевременного получения в нужном составе, включая прогнозируемые параметры объекта. Поэтому на первый план выходят надежное сохранение информации и ее эффективное извлечение, восприятие и дальнейшее использование. Значение информационных технологий и заключается в решении перечисленных задач [1, 2].

Эффективность передачи и использования информации обеспечивается, в первую очередь, ее структурированием, удобной фильтрацией, наглядностью, автоматическим учетом множества важных факторов при моделировании.

В настоящей статье рассмотрены основные применяемые на практике информационные технологии и их роль в эффективном выводе из эксплуатации реакторных установок различного назначения. Рассмотрение информационных