

## РАДИАЦИОННОЕ УПРОЧНЕНИЕ И ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА МАТЕРИАЛОВ НА ОСНОВЕ $\text{SiO}_2$

**В.А. Степанов<sup>\*, \*\*</sup>, П.В. Деменков<sup>\*\*\*</sup>, О.В. Никулина<sup>\*\*\*\*</sup>**

*\* Обнинский институт атомной энергетики НИЯУ МИФИ*

*249030, Калужская обл., г. Обнинск, Студгородок, д. 1.*

*\*\* ФГБУН Межведомственный центр аналитических исследований в области физики, химии и биологии при Президиуме РАН*

*117997, г. Москва, ул. Профсоюзная, д. 65, с. 6*

*\*\*\* ФГУП «ГНЦ РФ-ФЭИ им. А.И. Лейпунского»*

*249033, Калужская обл., г. Обнинск, пл. Бондаренко, д. 1*

*\*\*\*\* Обнинское НПП «Технология» им. А.Г. Ромашина*

*249031, Калужская обл., г. Обнинск, Киевское шоссе, д. 15*

**Р**

В предварительных исследованиях было показано, что спектры оптического поглощения радиационно-окрашенных стекол соответствуют спектральному ходу потерь на рассеяние оптически неоднородной среды. Причинами одинаковых оптических изменений в стеклах различного состава являются радиационное разделение электрического заряда в структурно нанонеоднородном объеме стекол, поляризация и образование нанометровых оптических неоднородностей.

Показано, что радиационные изменения механических и оптических свойств кварцевых стекол имеют одинаковую природу. Проведены оценки и показано, что разделение электрического заряда в стеклах происходит до поглощенных доз порядка 1 МГр. Локальное разделение электрического заряда вследствие появления кулоновских сил приводит к радиационному кулоновскому упрочнению стекол. Оценка кулоновского упрочнения кварцевых стекол составила  $\sim 1 \cdot 10^7$  Па.

Сделанные теоретические оценки экспериментально подтверждены с помощью измерений механических свойств стекол непосредственно в процессе мощного ионизирующего протонного облучения, а также испытаний на механическую прочность композиционного материала с наполнителем из кварцевого стекла. В процессе облучения протонами с мощностью дозы  $5 \cdot 10^3$  Гр/с (энергией 8 МэВ) до пороговых доз  $\sim (1 - 5) \cdot 10^6$  Гр в кварцевых стеклах КУ-1 происходило уменьшение декремента акустических колебаний, связанное с кулоновским упрочнением. После гамма-облучения  $1,34 \cdot 10^5$  Гр композита ХАФСкв предел прочности увеличился на величину до 20 МПа, и это находится в интервале оценок кулоновского упрочнения кварцевого стекла. Показано, что ионизирующее излучение не оказывает влияние на модули упругости материалов на основе  $\text{SiO}_2$ .

**Ключевые слова:** кварцевые стекла, гамма-облучение, оптические свойства, акустические измерения, радиационное упрочнение.

## ВВЕДЕНИЕ

Использование стекол в качестве элементов в оптических системах радиационных устройств имеет ряд существенных ограничений, связанных с уменьшением спектрального диапазона прозрачности при радиационных воздействиях. Например, спектральный диапазон прозрачности кварцевых стекол в результате радиационного облучения может сужаться от 0,2 – 4,0 мкм до 0,3 – 2 мкм [1]. Фторидные стекла прозрачны в более широком спектральном диапазоне от 0,2 до 7,0 мкм, который после облучения уменьшается до 0,4 – 6,0 мкм [2]. При этом для всех типов стекол вне зависимости от их химического состава в коротковолновой части спектра после облучения происходят размытие и сдвиг фундаментального края поглощения в область больших длин волн.

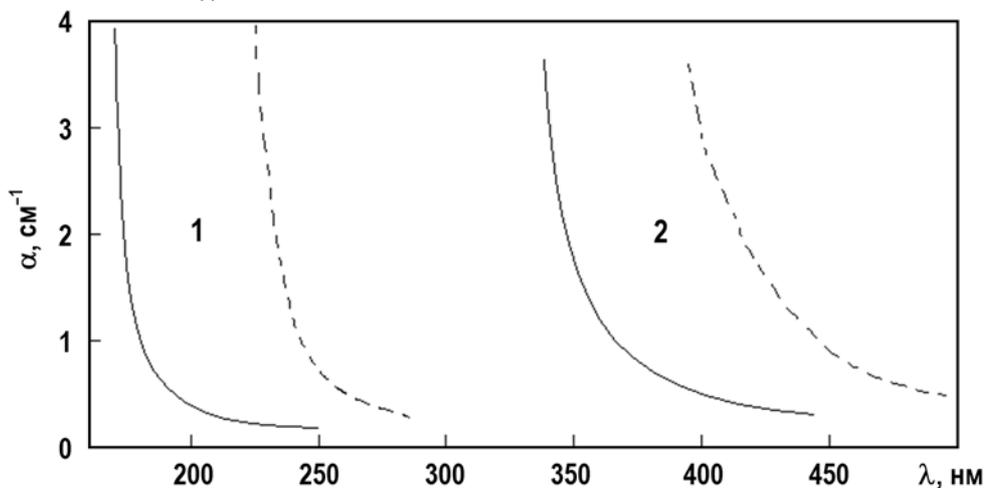


Рис. 1. Спектры оптического поглощения силикатных стекол до (сплошные линии) и после гамма-облучения (штриховые линии): 1 – КУ-1 (доза  $1 \cdot 10^8$  Гр); 2 – КИ (доза  $4 \cdot 10^5$  Гр)

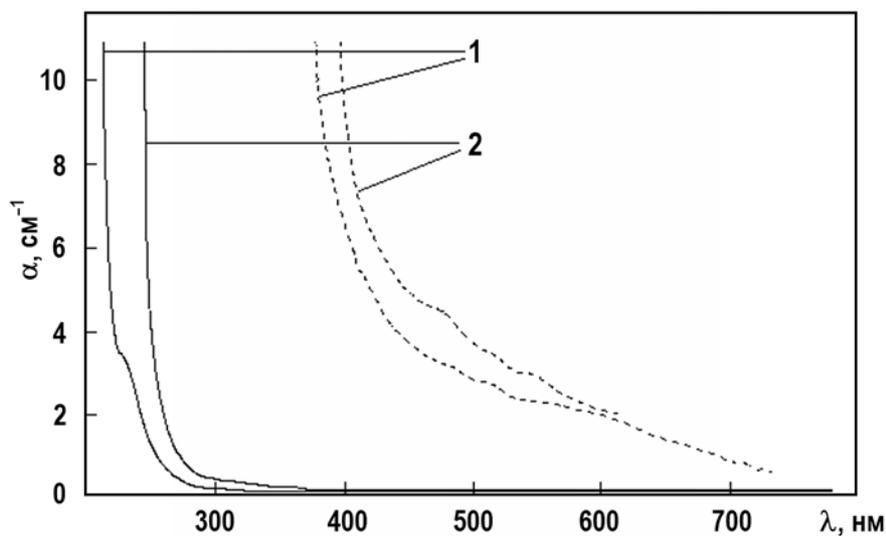
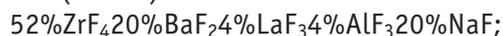


Рис. 2. Спектры оптического поглощения фторидных стекол до (сплошные линии) и после гамма облучения (штриховые линии): 1 – ZBLAN (доза  $1,2 \cdot 10^6$  Гр); 2 – AFG (доза  $5 \cdot 10^4 - 1 \cdot 10^5$  Гр)

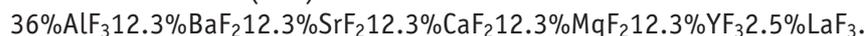
На рисунках 1, 2 в качестве примера представлены спектры оптического поглощения кварцевых и фторидных стекол до и после облучения на гамма-источнике  $^{60}\text{Co}$ . Кварцевые стекла КУ-1 содержат минимальное количество металлических при-

месей Al, Fe, Na – менее 0,001%. В стеклах КИ, напротив, содержание металлических примесей Zr, Sr, As, Mo и Ba достигает 1%. Поэтому край поглощения стекла состава КИ сдвинут в красную область. Фторидные стекла многокомпонентны, они состоят из пяти – семи различных фторидных соединений:

фторцирконатное стекло (ZBLAN) –



фторалюминатное стекло (AFG) –



После облучения происходят размытие и сдвиг фундаментального края поглощения в область больших длин волн. Такие изменения в спектрах оптического поглощения стекол невозможно объяснить появлением при облучении дефектов структуры – центров оптических переходов. В этом случае приходится полагать, что при облучении вне зависимости от типа стекла образуется непрерывный ряд центров окраски со сплошным спектром энергетических уровней, при котором оптические переходы становятся возможными во всем видимом и ультрафиолетовом диапазонах. Одинаковый характер радиационных изменений оптических свойств стекол различного состава обусловлен общим, присущим для всех стекол, характером их наноструктуры [2, 3]. В нашей работе также показано, что радиационные изменения механических свойств стекол наряду с изменениями оптических спектров происходят по причине их структурной микро- и нанонеоднородности.

### СТРУКТУРА И ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ОБЛУЧЕННЫХ СТЕКОЛ

Еще в 1921 г. А.А. Лебедевым было высказано предположение, что силикатное стекло имеет скрытокристаллическое строение, т.е. состоит из большого числа мельчайших кристаллитов. Согласно этой гипотезе, структуру стекол можно рассматривать как неоднородную среду из микроструктурных образований, каждое из которых характеризуется упорядоченным расположением атомов. Микронеоднородность стекол подтверждена с использованием различных методов исследования [4]. Поэтому большинство исследователей признают стекло неоднородным и химически, и структурно. Стекла представляют собой особое неупорядоченное состояние твердого тела, в котором, однако, в нанобластях сохраняется порядок в положении атомов. Такие области (домены), размер которых определяется корреляционным радиусом ближнего порядка структуры, могут варьироваться в пределах  $d = 1 - 10$  нм. Между доменами могут располагаться области такого же размера с разупорядоченной структурой [5, 6].

Ионизирующее облучение приводит к разделению электрического заряда вследствие перезарядки электрон-дырочных ловушек и к возникновению оптических неоднородностей в объеме стекла из-за поляризации объема вблизи заряженных центров [3]. Радиационные носители тока (электроны и дырки) мигрируют к структурным неоднородностям, к границам доменов. Это приводит к возникновению разделенных областей когерентного рассеяния света размером  $d$ . Анализ спектров поглощения позволил заключить, что спектральный ход оптических потерь в радиационно-окрашенных стеклах наиболее хорошо соответствует спектральному ходу потерь на рассеяние в оптически неоднородной среде [2, 3]. Поскольку в видимом диапазоне длина волны света  $\lambda > 30d$ , то оптические потери за счет рассеяния и спектральный ход коэффициента поглощения (потерь) можно описывать с помощью теории рассеяния Релея [7]:

$$\alpha = \frac{4\pi r_e^2}{3} \cdot \frac{(n_e d^3)^2}{[(\lambda/\lambda_0)^2 - 1]^2} \cdot n_d, \quad (1)$$

где  $r_e$  – классический радиус электрона ( $2,8 \cdot 10^{-15}$  м);  $\lambda_0$  – длина волны, соответствующая ширине запрещенной зоны;  $n_e$  – концентрация валентных электронов, по порядку величины атомная концентрация;  $n_d$  – концентрация активных в рассеянии доменов. Если положить, что вся поглощенная энергия гамма-излучения  $E_g$  расходуется на рождение носителей заряда, то с увеличением поглощенной дозы  $D$  в отсутствие электрон-дырочной аннигиляции, когда все рожденные свободные электроны захватываются на ловушки, концентрация активных в рассеянии доменов растет как

$$n_d = \frac{D\rho}{E_g} \cdot \frac{1}{6d^2 n_e^{2/3}}, \quad (2)$$

где  $\rho$  – плотность стекла. Подставляя (2) в (1), получим зависимость от дозы:

$$\alpha = \frac{2\pi r_e^2}{9} \cdot \frac{D\rho}{E_g} \cdot n_e^{4/3} \cdot \frac{1}{[(\lambda/\lambda_0)^2 - 1]^2} \cdot d^4. \quad (3)$$

Размер рассеивающих свет доменов в соответствии с таким механизмом радиационно-наведенных оптических потерь в стеклах определяется корреляционным радиусом ближнего порядка, который к тому же соответствует размеру мельчайших элементов структуры, размеру областей когерентного рассеяния рентгеновского излучения. Вычисленные из спектров оптических спектров облученных стекол (рис. 1) с помощью формулы (3) значения размеров областей когерентного рассеяния света при 300 – 600 нм для КУ-1 – 1,1 нм, AFG 3,5 – 7 нм, ZBLAN – 5 нм хорошо соответствовали значениям размеров когерентного рассеяния (структурных блоков), вычисленных из спектров рентгеновской дифракции: КУ-1 – 1,0 нм, AFG – 3,2 нм, ZBLAN – 4,2. Расхождения между оптическими и рентгеновскими значениями имеют место, когда в стеклах присутствуют глубокие центры захвата электронов, например, примеси ионов переходных металлов. Например, для стекла КИ вычисленное из оптических спектров значение 8,1 нм значительно превышает значение области когерентного рентгеновского рассеяния 1,3 нм. Для гамма-облученных стекол различного состава – кварцевых (КУ, КИ), фторидных (фторцирконатных, фторгафнатных, фторалюминатных) существует корреляция поглощения в коротковолновой части спектра с исходной наноструктурой. В соответствии с (3) оптические потери в облученном стекле сильно зависят от размера доменов, пропорционально  $d^4$ .

Можно оценить дозу насыщения, при которой весь объем стекла разбивается на области оптического рассеяния:

$$D_d = \frac{3E_g}{d\rho} \cdot n_e^{2/3}. \quad (4)$$

Это выражение для кварцевых стекол дает оценку  $D_d \sim (0,7 - 2) \cdot 10^6$  Гр, которая вполне согласуется с экспериментальными значениями доз насыщения радиационной окраски [1].

### **РАДИАЦИОННО-ИНДУЦИРОВАННОЕ РАЗДЕЛЕНИЕ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ЗАРЯДА В НЕОДНОРОДНЫХ ДИЭЛЕКТРИКАХ**

Исследования [8 – 10], проведенные на керамических диэлектрических материалах, указывают на эффективное радиационно-индуцированное образование разноименно электрически заряженных микрообластей в объеме. Было обнаружено, что при протонном облучении (энергия 8 МэВ, мощность дозы  $1,4 \cdot 10^4$  Гр/с) величина избыточного положительного заряда в зернах 1 – 10 мкм керамики  $Al_2O_3:Cr^{3+}$  ( $1 \cdot 10^{-2}$  масс % хрома) превышает  $1 \cdot 10^{-5}$  Кл/см<sup>3</sup>, а созданная этим заря-

дом напряженность электрического поля более  $1 \cdot 10^4$  В/см. Такие значения были рассчитаны по увеличению интенсивности радиoluminesценции полосы ионов  $\text{Cr}^{3+}$  (690 нм). Механизм радиoluminesценции обусловлен захватом электронов ионами  $\text{Cr}^{4+}$  и высвечиванием образующихся ионов  $\text{Cr}^{3+}$ . В керамике происходит сток электронов на границы, что приводит к избыточному положительному заряду и повышению концентрации ионов  $\text{Cr}^{4+}$  в зерне. Интенсивность этой полосы в монокристаллах  $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$  оставалась в этих же условиях постоянной. Оценка плотности электрического заряда при протонном облучении на границах зерен керамики  $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$  дает  $3 \cdot (10^{-6} - 10^{-5})$  Кл/м<sup>2</sup>. Это соответствует перезарядке до 10% от всего количества ионов хрома.

В кварцевых стеклах рост интенсивности радиoluminesценции с дозой облучения также связывался с радиационно-индуцированным разделением заряда [11]. Локальное разделение электрического заряда вследствие появления кулоновских сил приводит к радиационному упрочнению структурно-неоднородных диэлектрических материалов. Оценим кулоновское упрочнение в стекле. Элементы структуры неоднородного распределения заряда в объеме облученного стекла представим плоскими заряженными конденсаторами размером  $d$  с плотностью заряда на обкладках  $\rho_s$ , которая пропорциональна плотности заряженных ловушек для электронов и дырок на границах доменов. Электрическая энергия плоского конденсатора

$$U = \frac{Q^2}{2C}, \quad (5)$$

где  $C = \epsilon\epsilon_0 S/d$ ;  $S$  – площадь обкладок;  $d$  – расстояние между ними. Между обкладками возникает давление из-за кулоновского притяжения

$$\sigma = -\frac{1}{S} \frac{\partial U}{\partial d},$$

и если  $Q = \rho_s S$ , то

$$\sigma = -\frac{\rho_s^2}{2\epsilon\epsilon_0}. \quad (6)$$

Знак минус означает сжатие.

В керамике  $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$  при протонном ионизирующем облучении заряжается до  $1 \cdot 10^{-1}$  электрон-дырочных связанных с  $\text{Cr}^{3+}$  ловушек. Если положить, что в кварцевых стеклах при облучении на границах доменов максимальный процент заряженных ловушек тот же, а их количество порядка концентрации связей Si-O, то для кулоновского упрочнения получаем верхнюю оценку  $1 \cdot 10^8$  Па. Это значение, однако, на порядок превышает предел текучести и для некоторых стекол даже предел прочности. При размере доменов  $d = 1$  нм (например, в стеклах КУ-1) в поверхностном слое такой же толщины располагается до 30-ти формульных единиц  $\text{SiO}_2$ . Это дает нижнюю оценку количества заряженных ловушек около 3% и нижнюю оценку упрочнения до  $1 \cdot 10^7$  Па, которая, по-видимому, близка к реальным значениям.

### **АКУСТОМЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СИЛИКАТНЫХ СТЕКОЛ ПРИ ПРОТОННОМ ОБЛУЧЕНИИ**

Разделение электрического заряда в стеклах в соответствии с (4) происходит до доз порядка 1 МГр. Динамика радиационного упрочнения в процессе облучения должна быть такой же, как динамика оптической деградации. Для экспериментальной проверки этого утверждения были предприняты измерения механических свойств стекол непосредственно в процессе мощного ионизирующего протонного облучения с помощью метода составного пьезоэлектрического вибратора. Для измерения акустомеханических

свойств твердых тел (модуля Юнга и декремента акустических колебаний) непосредственно в процессе облучения использовался описанный в [12, 13] резонансный метод.

Резонансные методы основаны на анализе установившихся вынужденных колебаний образцов в виде стержней или пластин. На рисунке 3 представлена схема составного пьезоэлектрического вибратора, который представляет собой сборку из пьезокварца и образца исследуемого материала. В основе метода лежат прямой и обратный пьезоэлектрические эффекты. Измерения резонансной частоты и добротности пьезокварца и системы пьезокварц – образец позволяют рассчитать характеристики образца. При работе в условиях резонанса в вибраторе образуется стоячая механическая волна, расположение узлов и пучностей которой учтено при закреплении кварца и подборе длины образца. Контрольно-измерительная система позволяет с высокой точностью измерять резонансную частоту и декремент акустических колебаний составного вибратора. Зная эти параметры, можно рассчитать значения модуля Юнга  $E$  и декремента акустических колебаний  $\delta$  испытуемого образца.

Для исследований изменений акустомеханических свойств образцов в условиях мощного радиационного воздействия составной пьезоэлектрический вибратор располагался на выходе ионопровода ускорителя легких ионов ЭГП-10М (ГНЦ РФ-ФЭИ) так, что пучок протонов диаметром 1 см попадал в центр образца (см. рис. 3), где находятся пучность стоячей ультразвуковой волны и максимум ее амплитуды (максимум деформации). Установка позволяла проводить измерения резонансной частоты вибратора (модуля Юнга) с погрешностью 0,002%, декремента акустических колебаний на частоте  $\sim 100$  кГц с погрешностью 6% в условиях протонного облучения.

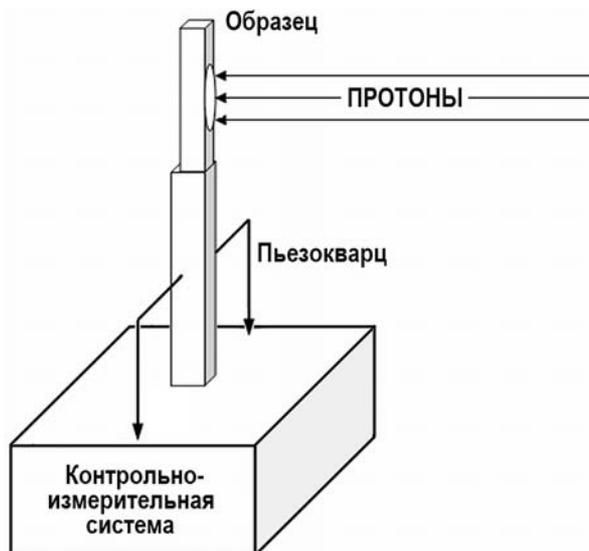


Рис. 3. Схема измерений акустомеханических свойств образцов в процессе облучения протонами

Были проведены измерения декремента акустических колебаний и модуля Юнга стекла КУ-1 в процессе облучения протонами с энергией 8 МэВ и мощностью дозы  $5 \cdot 10^3$  Гр/с. Образцы стекла КУ-1 представляли собой пластины  $28,2 \times 3 \times 0,4$  мм. Измерения проводились при относительной деформации образца  $\sim 1 \cdot 10^{-6}$ . Как видно из рис. 4, декремент акустических колебаний сначала быстро уменьшается, достигая примерно за 200 с значения  $2,2 \cdot 10^{-4}$  (доза  $\sim 1 \cdot 10^6$  Гр), а затем, практически, не меняется на протяжении всего эксперимента (доза за эксперимент  $\sim 9 \cdot 10^6$  Гр).

Поведение декремента при облучении протонами связано с изменением микро-

пластичности и определяется образованием напряженно-деформированных областей в стекле.

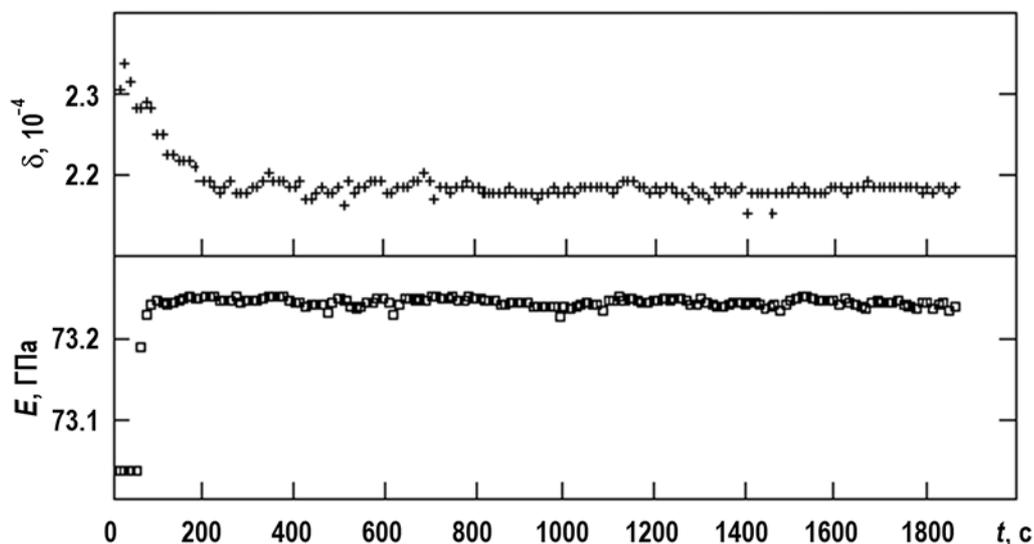


Рис. 4. Зависимости модуля Юнга  $E$  стекла КУ-1 и декремента акустических колебаний  $\delta$  составного вибратора в процессе облучения протонами (энергия 8 МэВ, мощность дозы  $5 \cdot 10^3$  Гр/с) при амплитуде относительной деформации  $1 \cdot 10^{-6}$

Падение декремента на начальном этапе указывает на уменьшение микропластичности за счет упрочнения. Возникающие в процессе ионизирующего излучения области с кулоновским упрочнением блокируют движение дефектов – носителей пластичности. Уменьшение декремента акустических колебаний связано с увеличением количества таких областей в стекле. При дозе облучения до  $\sim 1 \cdot 10^6$  Гр, в соответствии с (4), упрочненные микрообласти заполняют весь объем, что приводит к завершению процесса снижения декремента.

### МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ГАММА-ОБЛУЧЕННЫХ СИЛИКАТНЫХ КОМПОЗИТОВ

Оценка кулоновского упрочнения в облученных силикатных стеклах дает значения порядка десятков мегапаскалей при поглощенных дозах, близких к дозе насыщения (4) до 1 МГр. Такое упрочнение приводит к увеличению прочности материалов на основе стекол  $\text{SiO}_2$ . В ОА «ОНПП «Технология» им. А.Г. Ромашина» методами вакуумного и контактного формования производится такой неорганический композиционный материал аэрокосмического назначения марки ХАФСкв [14]. В качестве текстурированного наполнителя в нем используется ткань из аморфного кварцевого волокна с содержанием примесей не более  $1 \cdot 10^{-2}$ . Неорганическое связующее на основе фосфатов алюминия получают из водных растворов кислых фосфорно-кислых солей алюминия и хрома, в которые добавляют различные аппреты и микрошлифпорошки из электрокорунда и аэросила для химической и механической защиты наполнителя. Такой композит пригоден для работы вплоть до  $1500^\circ\text{C}$ .

Прочность композита определяется прочностью кварцевого наполнителя. Увеличение прочности от 10 МПа можно обнаружить в механических испытаниях материалов даже с учетом неизбежного разброса результатов измерений. Для проведения испытаний было изготовлено 30 образцов ХАФСкв размерами  $(20 \times 10 \times 2)$  мм, половина из которых была облучена на гамма-источнике  $^{60}\text{Co}$ . Механические испытания материала проводились по ГОСТ 4651-82 на установке LFM-50, расчет модуля упру-

гости проводился по ГОСТ 9550-81.

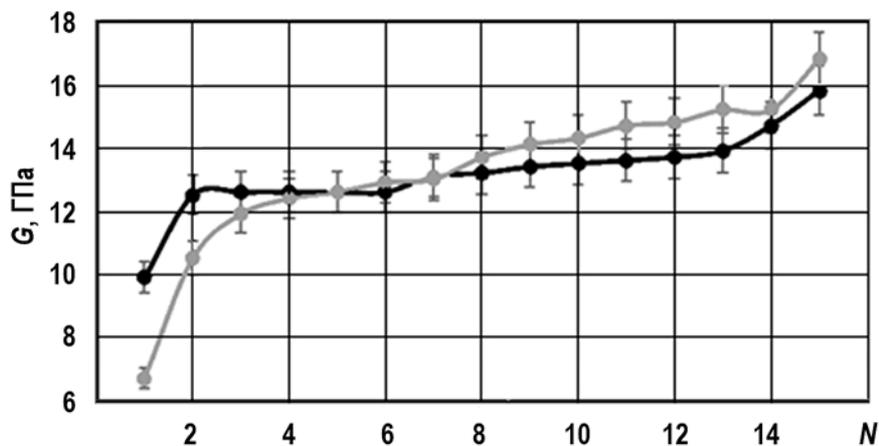


Рис. 5. Значения модуля упругости  $G$  при изгибе образцов ( $N$ ) материала ХАФСкв до (черная кривая) и после гамма-облучения с дозой  $1,34 \cdot 10^5$  Гр (серая кривая)

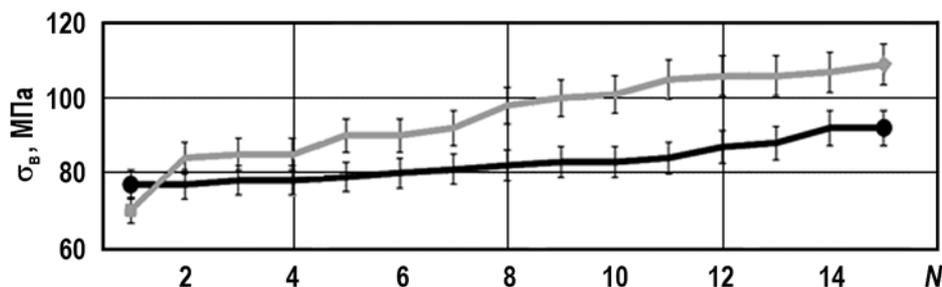


Рис. 6. Предел прочности  $\sigma_B$  при изгибе образцов материала ХАФСкв до (черная кривая) и после гамма-облучения с дозой  $1,34 \cdot 10^5$  Гр (серая кривая)

Результаты механических испытаний приведены на рис. 5, 6. Так же, как и в условиях протонного облучения кварцевых стекол, после гамма-облучения композита на основе ткани из силикатных волокон ХАФСкв не происходит заметных изменений модуля упругости. На рисунке 5 видно, что значения для облученного материала имеют как большие, так и меньшие значения в пределах разброса в 2 ГПа. Напротив, предел прочности гамма-облученного композита превышает значение исходного материала. При этом максимальное наблюдаемое упрочнение 20 МПа находится в интервале приведенных оценок кулоновского упрочнения кварцевого стекла.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показано, что радиационные изменения механических и оптических свойств кварцевых стекол имеют одинаковую природу и связаны с радиационно-индуцированным разделением электрического заряда на структурных нанонеоднородностях. Проведены оценки и показано, что разделение электрического заряда в стеклах происходит до поглощенных доз порядка 1 МГр. Локальное разделение электрического заряда приводит к радиационному упрочнению стекол вследствие появления кулоновских сил. Оценка кулоновского упрочнения кварцевых стекол составила  $\sim 1 \cdot 10^7$  Па.

Измерения механических свойств стекол непосредственно в процессе мощного ионизирующего протонного облучения, а также испытания на механическую прочность композиционного материала с наполнителем из кварцевого стекла под-

твердили сделанные оценки. В процессе облучения протонами с энергией 8 МэВ и мощностью дозы  $5 \cdot 10^3$  Гр/с в кварцевых стеклах КУ-1 происходило уменьшение декремента акустических колебаний (упрочнение) до доз  $\sim (1 - 5) \cdot 10^6$  Гр. После гамма-облучения  $1,34 \cdot 10^5$  Гр предел прочности композита ХАФСкв на основе ткани из силикатных волокон увеличивался на величину до 20 МПа, и это находится в интервале расчетов кулоновского упрочнения кварцевого стекла. Показано также, что ионизирующее излучение не оказывает влияние на модули упругости материалов на основе  $\text{SiO}_2$ .

### Литература

1. Арбузов В.И. Основы радиационного оптического материаловедения – СПб.: СПб ГУ ИТМО, 2008. – 284 с.
2. Stepanov V.A., Baskov P.B., Chernov V.M., Fedorov V.D., Khorozova O.D., Kurdyavko P.V., Sakharov V.V., Stepanov P.A. Fluoride Glasses as Materials for Radiation Optics. // Proc. of the XIII<sup>th</sup> Int. Symposium on Non-Oxide Glasses and New Optical Glasses. September 9-13, 2002. – Pardubice, Czech Republic. – Part II. – PP. 674-677.
3. Степанов В.А. Радиационно-индуцированные изменения оптических свойств стекол. // Тез. докл. VII Межд. конф. «Инженерные проблемы термоядерных реакторов». С.-Петербург, 28-31 октября 2002 г. – С. 195.
4. Малиновский В.К., Суворовцев Н.В. Неоднородность в нанометровом масштабе как универсальное свойство стекол. // Физ. хим. стекла. – 2000. – Т. 26. – № 3. – С. 315-321.
5. Malinovsky V.K., Novikov V.N. The nature of the glass transition and the excess low-energy density of vibrational states in glasses. // J. Phys.: Condens. Matter. – 1992. – Vol.4. – P. L139.
6. Малиновский В.К., Новиков В.Н., Суворовцев Н.В., Шебанин А.П. Изучение аморфных состояний  $\text{SiO}_2$  методом комбинационного рассеяния. // ФТТ. – 2000. – Т. 42. – Вып.1. – С. 62-68.
7. Фабелинский И.Л. Молекулярное рассеяние света. – М.: Высшая школа. – 1965. – 512 с.
8. Chernov V.M., Khorasanov G.L., Plaksin O.A., Stepanov V.A., Stepanov P.A., Belyakov V.A. Electrical and Optical Characteristics of Dielectrics for Fusion Use under Irradiation. // Journal of Nuclear Materials. – 1998. – Vol. 253. – P. 175.
9. Plaksin O.A., Chernov V.M., Stepanov P.A., Stepanov V.A. Radiation-Induced Electrical and Optical Processes in Materials Based on  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . // Journal of Nuclear Materials. – 1999. – Vol. 271-272. – P. 496.
10. Плаксин О.А., Степанов В.А. Радиационно-индуцированные электрические и оптические процессы в материалах на основе  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . // Оптика и спектроскопия. – 2001. – Т. 90. – № 4. – С. 612-621.
11. Деменков П.В., Плаксин О.А., Степанов В.А., Степанов П.А., Чернов В.М. Кинетика люминесценции кварцевых стекол при облучении протонами. // Письма в ЖТФ. – 2000. – Т. 26. – Вып. 11. – С. 57-61.
12. Никаноров С.П., Кардашев Б.К. Упругость и дислокационная неупругость кристаллов. – М.: Наука, 1985. – 256 с.
13. Кардашев Б.К. Внутреннее трение и физико-механические свойства твердых тел. // Кристаллография. – 2009. – Т. 54. – № 6. – С. 1074-1086.
14. Степанов П.А., Атрощенко И.Г., Стародубцева Н.И., Шуткина О.В., Мельников Д.А. Разработка высокотемпературных композиционных материалов теплозащитного и радиотехнического назначения // Перспективные материалы. – 2014. – №10. – С. 17-21.

Поступила в редакцию 06.08.2020 г.

**Авторы**

Степанов Владимир Александрович, начальник отделения, профессор, д.ф.-м.н.

E-mail: stepanov@iate.obninsk.ru

Деменков Павел Васильевич, начальник лаборатории, к.ф.-м.н.

E-mail: dem1@mail.ru

Никулина Ольга Владимировна, начальник сектора

E-mail: luna23@yandex.ru

UDC 621.039:538.951/.958

**RADIATION HARDENING AND OPTICAL PROPERTIES  
OF MATERIALS BASED ON SiO<sub>2</sub>**

Stepanov V.A. \*, \*\*, Demenkov P.V. \*\*\*, Nikulina O.V. \*\*\*\*

\* Obninsk Institute for Nuclear Power Engineering, NRNU «MEPhI»

1 Studgorodok, 249040 Obninsk, Kaluga Reg., Russia

\*\* FGBUN Interdepartmental Center of Analytical Researches in the Field of  
Physics, Chemistry

and Biology at the RAS Presidium

65 bld. 6 Profsoyuznaya Str., 117997 Moscow, Russia

\*\*\* JSC «SSC RF-IPPE n.a. A.I. Leypunsky»

1 Bondarenko Sq., 249033 Obninsk, Kaluga Reg., Russia

\*\*\*\* ORPE «Technologiya»

15 Kievskoe Hwy, 249031 Obninsk, Kaluga Reg., Russia

ABSTRACT

In preliminary studies, it was shown that the optical absorption spectra of radiation-colored glasses are the spectra of optical losses due to scattering by optical inhomogeneities. Optical inhomogeneities in glasses of various compositions arise due to the radiation separation of the electric charge and polarization in nanosized structural elements.

The authors of this work prove that the radiation changes in the mechanical and optical properties of silica glasses are of the same nature. The performed estimates indicate that the separation of the electric charge in glasses occurs up to absorbed doses of about 1 MGy. The local separation of the electric charge due to the appearance of Coulomb forces leads to the radiation Coulomb hardening of glasses. The estimate of the Coulomb hardening of quartz glasses was  $\sim 1 \cdot 10^7$  Pa.

The theoretical results were experimentally confirmed by measuring the mechanical properties of glasses under high intensity proton irradiation as well as by testing the mechanical strength of a composite material based on quartz glass. Under proton irradiation with a dose rate of  $5 \cdot 10^3$  Gy/s (energy of 8 MeV) up to threshold doses of  $\sim (1 - 5) \cdot 10^6$  Gy in KU-1 quartz glasses, the decrement of acoustic vibrations decreased due to the Coulomb hardening. After gamma irradiation with  $1.34 \cdot 10^5$  Gy, the tensile strength of a composite material based on quartz glass increased by up to 20 MPa. This value is in the range of estimates of the Coulomb hardening of quartz glasses. It is also shown that ionizing radiation does not affect the elastic modulus of materials based on SiO<sub>2</sub>.

**Key words:** quartz glass, gamma irradiation, optical properties, acoustic measurement, radiation hardening.

## REFERENCES

1. Arbuzov V.I. *Fundamentals of Radiation Optical Material Science*. Saint-Petersburg. Saint-Petersburg State University ITMO Publ., 2008, 284 p. (in Russian).
2. Stepanov V.A., Baskov P.B., Chernov V.M., Fedorov V.D., Khorozova O.D., Kurdyavko P.V., Sakharov V.V., Stepanov P.A. Fluoride Glasses as Materials for Radiation Optics. *Proc. of the XIII<sup>th</sup> Int. Symposium on Non-Oxide Glasses and New Optical Glasses*, September 9-13, 2002. Pardubice, Czech Republic, Part II, pp. 674-677.
3. Stepanov V.A. Radiation-Induced Changes in Optical Properties of Glasses. *Proc. of the VII<sup>th</sup> Int. Conf. «Engineering Problems of Thermonuclear Reactors»*. St.-Petersburg, October 28-31. 2002, p. 195 (in Russian).
4. Malinovsky V.K., Surovtsev N.V. Non-Homogeneity on the Nanometer Scale as a Universal Property of Glasses. *Fizika i Khimiya Stekla*. 2000, v. 26, no. 3, pp. 315-321 (in Russian).
5. Malinovsky V.K., Noviokov V.N. The Nature of the Glass Transition and the Excess Low-Energy Density of Vibrational States in Glasses. *J. Phys.: Condens. Matter*. -1992, v. 4, pp. L139.
6. Malinovsky V.K., Novikov V.N., Suvorovtsev N.V., Shebanin A.P. Study of Amorphous States of SiO<sub>2</sub> by Method of Raman Scattering. *Fizika Tvyordogo Tela*. 2000, v. 42, iss. 1, pp. 62-68 (in Russian).
7. Fabelinsky I.L. *Molecular Light Scattering*. Moscow. Vysshaya Shkola Publ., 1965, 512 p. (in Russian).
8. Chernov V.M., Khorasanov G.L., Plaksin O.A., Stepanov V.A., Stepanov P.A., Belyakov V.A. Electrical and Optical Characteristics of Dielectrics for Fusion Use under Irradiation. *Journal of Nuclear Materials*. 1998, v. 253, p. 175.
9. Plaksin O.A., Chernov V.M., Stepanov P.A., Stepanov V.A. Radiation-Induced Electrical and Optical Processes in Materials Based on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. *Journal of Nuclear Materials*. 1999, v. 271-272, p. 496.
10. Plaksin O.A., Stepanov V.A. Radiation-Induced Electrical and Optical Processes in Materials based on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. *Optika i Spektroskopiya*. 2001, v. 90, no. 4, pp. 612-621 (in Russian).
11. Demenkov P.V., Plaksin O.A., Stepanov V.A., Stepanov P.A., Chernov V.M. Luminescence Kinetics of Quartz Glass under Proton Irradiation. *Pis'ma v Zhurnal Tekhnicheskoy Fiziki*. 2000, v. 26, iss. 11, pp. 57-61 (in Russian).
12. Nikanorov S.P., Kardashev B.K. *Elasticity and Dislocation Inelasticity of Crystals*. Moscow. Nauka Publ., 1985, 256 p. (in Russian).
13. Kardashev B.K. Internal Friction and Physical and Mechanical Properties of Solids. *Krystallografiya*. 2009, v. 54, no. 6, pp. 1074-1086 (in Russian).
14. Stepanov P.A., Atroshchenko I.G., Starodubtseva N.I., Shutkina O.V., Melnikov D.A. Development of High-Temperature Composite Materials of Heat Protective and Radio Engineering Purposes. *Perspektivnye Materialy*. 2014, no. 10, pp. 17-21 (in Russian).

**Authors**

Stepanov Vladimir Aleksandrovich, Head of Department, Dr. Sci. (Phys.-Math.)

E-mail: stepanov@iate.obninsk.ru

Demenkov Pavel Vasilievich, Head of the Laboratory, Cand. Sci. (Phys.-Math.)

E-mail: dem1@mail.ru

Nikulina Olga Vladimirovna, Sector Leader

E-mail: lunya23@yandex.ru