

Исследование радиационных дефектов в синтетическом кварце методом малоуглового рассеяния нейтронов

© В.М. Лебедев, В.Т. Лебедев, С.П. Орлов, Б.З. Певзнер*, И.Н. Толстихин**

Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова Российской академии наук,
188300 Гатчина, Ленинградская обл., Россия

* ОАО „Лаборатория свойств стекла“,
199053 Санкт-Петербург, Россия

** Институт геологии Кольского научного центра Российской академии наук,
184209 Апатиты, Мурманская обл., Россия

E-mail: lebedev@pnpi.spb.ru

(Поступила в Редакцию 4 июля 2005 г.)

Исследована надатомная структурная монокристаллов синтетического кварца с плотностями дислокаций $\rho = 54$ и 570 см^{-2} в исходном состоянии и после облучения быстрыми нейтронами энергией $E_n > 0.1 \text{ MeV}$ в реакторе ВВРМ ПИЯФ РАН в диапазоне флюенсов $F = 0.2 \cdot 10^{17} - 5.0 \cdot 10^{18} \text{ н/см}^2$. Если слабое облучение $F = 0.2 \cdot 10^{17} \text{ н/см}^2$ практически не вызывает структурных изменений, то при $F = 7.7 \cdot 10^{17} - 5.0 \cdot 10^{18} \text{ н/см}^2$ происходит заметная генерация дефектов с радиусами инерции $r_g \sim 1-2 \text{ нм}$, $R_G \sim 40-50 \text{ нм}$, а далее по мере увеличения флюенса растут число и объемная доля точечных, протяженных (каналы радиусом $\sim 2 \text{ нм}$) и глобулярных дефектов — зародышей аморфной фазы.

PACS: 61.12.Ex, 61.80.Hg, 61.82.Ms

1. Введение

Кварциты — важная составляющая земной коры: обычные горные породы и граниты содержат до 20% этого минерала. Некоторые из широко используемых руд, например железные кварциты, имеют еще большее содержание кварца. Высококачественные кристаллы кварца гидротермального или магматического происхождения также нередки в континентальной земной коре; они используются в качестве основного материала в высокотехнических технологиях, в ювелирном производстве и т.д. Синтетические кристаллы кварца, включая модифицированные облучением протонами, нейтронами и γ -лучами, также широко используются в современной технике.

Среди прочих геологических материалов кварц — один из самых подходящих для исследований в качестве модельного вещества, в первую очередь из-за изменчивости и довольно простой структуры. Ранее распространенный в природе чистый прозрачный кварц использовался в геологии для изучения в нем газовых и жидких включений, т.е. захваченных в ловушку посторонних веществ. Эти исследования позволили понять их происхождение и роль в магматических, гидрологических и рудообразующих процессах [1,2].

Кроме этого, концентрация собственных радиоактивных изотопов в кварце крайне мала. По этой причине, кристаллы кварца и/или кварца, отделенного от горных пород, используются нередко для датировки возраста этих пород путем измерения концентрации захваченных в ловушки атомов, образовавшихся в радиоактивном распаде (^3He , ^{10}Be , ^{21}Ne , ^{26}Al) [3,4]. Конечно, для выполнения подобных исследований необходим низкий фон от заключенных в ловушки атомов и радиоактивных

изотопов, а также достаточно долгое время хранения „запертых“ атомов.

Недавно Лехман и Толстихин [5] предложили новый подход в гидрологии, когда измерение концентрации гелия, захваченного в „ловушки“ кварцем, отделенном от песчаника, использовалось для определения времени хранения гелия в системе „твердые породы–жидкость“. Такой подход подразумевает установление равновесной концентрации гелия между жидкостью и крупинками кварца; время выравнивания концентраций оценивается в $\sim 10^4$ лет. В настоящее время кварц с довольно малым содержанием захваченного в ловушки гелия представляет собой полезный образец для гелия, захваченного кварцем из окружающей жидкости.

Большинство из указанных выше применений требует оценки скорости миграции посторонних ядер через естественный и синтетический кристаллы кварца. Кристаллические структуры кварца, построенные из кремний-кислородных тетраэдров, характеризуются тем, что в направлении осей симметрии высшего порядка (тригональной для α -кварца и гексагональной для β -кварца) в них имеются сквозные каналы, поперечные размеры которых превышают размеры тетраэдров. Из-за этого в кварце может наблюдаться эффективная диффузия примесей по каналам, параллельным рассмотренным осям симметрии [6]. Миграция атомов и их „захоронение“ может происходить также в структурах, которые образуются в кварце в результате облучения его электронами, нейтронами, ионами и γ -лучами [7,8]. Однако скорости миграции сильно различаются, и физические механизмы этого явления изучены недостаточно [9]. Например, скорость миграции гелия через естественные кварцы изменяется более чем на 10 порядков по величине для разных образцов [10,11]. Миграция атомов в несо-

вершенных синтетических кристаллах, а также кварца сильно затруднена из-за различной формы дефектов.

Чтобы создать упрощенную физическую модель развития радиационных дефектов для природного (так же, как и несовершенного синтетического) кристалла кварца, мы облучили ряд образцов синтетического кварца, имеющих изначально малую плотность дефектов, быстрыми нейтронами реактора с различными флюенсами. Исследование дефектной структуры синтетических кристаллов кварца после облучения нейтронами показывает общие закономерности развития радиационных повреждений в нем. Результаты этих исследований можно будет использовать для рассмотрения процессов миграции химических элементов в кварце, находящемся в земной коре.

Для исследования вида и количества исходных и вновь образовавшихся после облучения дефектов был использован метод малоуглового рассеяния нейтронов. Далее приводятся результаты этих исследований.

2. Эволюция надатомной структуры кристаллов кварца при облучении нейтронами

Быстрые нейтроны с энергиями $E_n > 0.1$ MeV повреждают практически равномерно большой объем кристалла [7,8]. Можно представить следующую картину пространственного распределения дефектов после облучения нейтронами [7,8,12]. В кварце быстрый нейтрон выбивает атомы кремния и кислорода из узлов решетки в междоузлия с образованием пар Френкеля — „междоузельный атом–вакансия“. Эти атомы отдачи (выбитые атомы кислорода и кремния), получив при столкновении с нейтроном высокую энергию, сначала оставляют за собой дорожку из достаточно удаленных друг от друга пар, состоящих из атома в междоузлии и вакансии. По мере уменьшения энергии ионов расстояние между столкновениями будет уменьшаться до тех пор, пока не приблизится к своему нижнему пределу — межатомному расстоянию; при этом область вокруг траектории будет сильно возмущена. В месте остановки иона образуется область неупорядоченной структуры — „пик смещения“ (или термический пик). Каждый из вторичных атомов отдачи, получив достаточную энергию, будет в миниатюре воспроизводить эту картину. Для ионов кислорода и кремния в кварце (энергии 20–100 keV) максимум распределения смещенных атомов вдоль пробега находится на расстоянии 36–130 и 18–80 nm соответственно [7,8].

В общем случае в кристаллах, облученных быстрыми нейтронами, рождаются точечные дефекты (пара „выбитый атом–вакансия“), протяженные дефекты и глобулы — „пики смещения“. Генерация дефектов зависит от свойств материала и температуры при облучении нейтронами [7].

В реакторе образец находится в поле нейтронного и γ -излучений. При этом нейтроны генерируют на 2–3 по-

рядка больше смещенных атомов, чем γ -лучи [7,8]. Последние стимулируют диффузию точечных дефектов — их отжиг и коагуляцию в более крупные дефекты.

В исследованиях механизма фазового перехода от α -кварца к β -кварцу при облучении α -кварца быстрыми нейтронами (флюенсы выше 10^{19} н/см²) было показано, что выделение зародыша другой фазы начинается с минимального размера $R_{\min} \sim 1.5\text{--}3.0$ nm, причем при размерах ниже R_{\min} зародыш нестабилен [8]. „Пики смещения“ и считаются зародышами новой фазы. Это области локального плавления радиусом $\sim R_{\min}$ с высокой температурой и давлением, появляющиеся равномерно в объеме кристалла и остывающие от расплава до средней температуры мишени за $10^{-10}\text{--}10^{-11}$ s. Кроме того, вокруг таких расплавленных областей возникают значительные механические напряжения [8].

При флюенсах менее 10^{19} н/см² в кристалле α -кварца возникают зародыши новой фазы, растущие за счет присоединения точечных дефектов. Происходит анизотропное расширение структуры кварца без заметного разупорядочения при накоплении точечных дефектов. В диапазоне нейтронных флюенсов $3 \cdot 10^{19}\text{--}5 \cdot 10^{19}$ н/см² перестройка структуры аналогична $\alpha \rightarrow \beta$ фазовому переходу в кварце. При дозе $8 \cdot 10^{19}$ н/см² проявляются дефекты, образующиеся за счет локализации большого числа ионов кислорода в структурных каналах кварца. Полная аморфизация происходит при флюенсах $F = 1 \cdot 10^{20}\text{--}2 \cdot 10^{20}$ н/см² и вызвана большим числом разорванных связей „кислород–кремний“ [8].

Для количественного описания зарождения дефектов в кварце, их развития в процессе облучения нейтронами и исследования начальной аморфизации были выбраны синтетические кристаллы кварца размером $\sim 1 \times 1 \times 1$ см³ с малыми начальными плотностями дислокаций $\rho = 54$ и 570 см⁻². Флюенсы нейтронов изменялись от $0.2 \cdot 10^{17}$ до $50 \cdot 10^{17}$ н/см².

3. Облучение образцов и структурные исследования

Облучение образцов кварца проводилось в канале В1 реактора ВВРМ ПИЯФ при температуре 60°C при плотности потока быстрых нейтронов $2 \cdot 10^{10}$ н/(см² · s). Распределение интенсивности нейтронов по энергии в области $E_n > 0.1$ MeV показано на рис. 1. При облучении нейтронами кристаллы кварца находились в кадмиевой фольге, поглощавшей низкоэнергетическую часть спектра нейтронов и γ -лучи. В четырех сериях облучений нейтронами достигнуты следующие флюенсы: $F_1 = 0.2 \cdot 10^{17}$ н/см², $F_2 = 7.7 \cdot 10^{17}$ н/см², $F_3 = 1.7 \cdot 10^{18}$ н/см², $F_4 = 5 \cdot 10^{18}$ н/см². Время облучения изменялось от 10 часов до 4–5 недель.

Надатомная структура кварца до и после облучения нейтронами исследовалась на дифрактометре „МЕМБРАНА-2“ методом малоуглового рассеяния тепловых нейтронов (длина волны $\lambda = 0.3$ nm, $\Delta\lambda/\lambda = 0.3$)

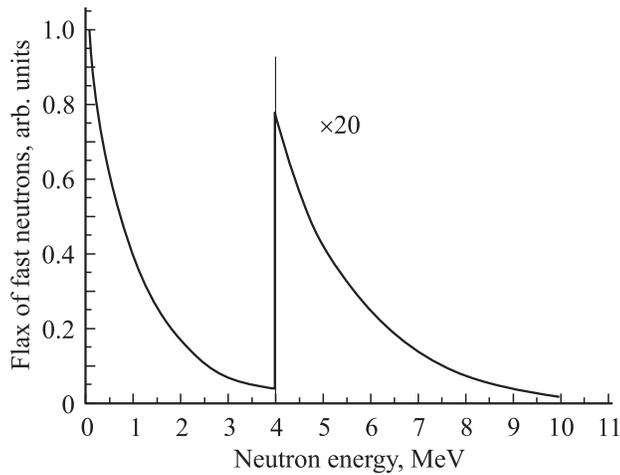


Рис. 1. Спектры быстрых нейтронов ($E_n > 0.1$ MeV) в канале В1 реактора ВВРМ.

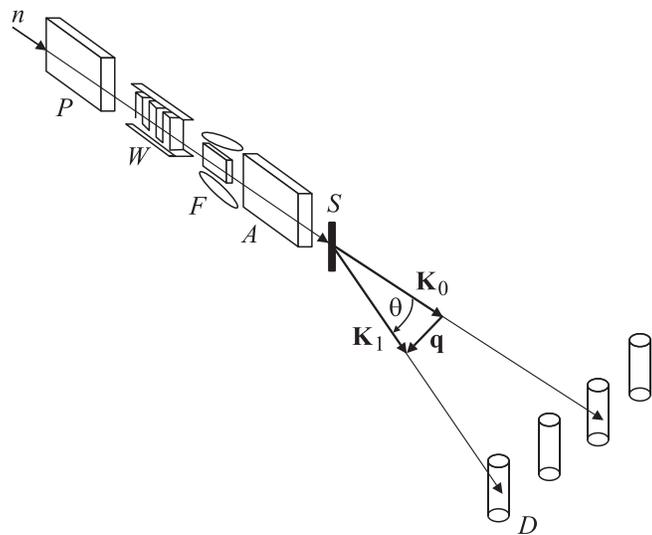


Рис. 2. Дифрактометр „МЕМБРАНА-2“: P — поляризатор, W — магнитный монохроматор, F — флиппер, A — анализатор, S — образец, D — детектор ($^{41}\text{He}^3$ -счетчик). При рассеянии нейтрона: \mathbf{k}_0 — начальный, \mathbf{k}_1 — конечный, $\mathbf{q} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_0$ — переданный импульс, θ — угол рассеяния.

в диапазоне переданных импульсов $\mathbf{q} = (4\pi/\lambda) \sin(\theta/2) = 0.03-0.8 \text{ nm}^{-1}$, где θ — угол рассеяния нейтронов (рис. 2). Рассеянные образцом нейтроны регистрировались детектором, состоящим из $^{41}\text{He}^3$ -счетчика в диапазоне углов $-2^\circ \leq \theta \leq +2^\circ$. Расположенные перед образцом два ^3He -счетчика (мониторы) измеряли интенсивность падающего пучка.

После нормировки измеренных интенсивностей рассеяния за счет мониторов, учета доли нейтронов, не испытавших рассеяние на исследуемом кварце (трансмиссии), и вычитания фона получались распределения интенсивностей рассеяния $I(q)$, характеризующие структуру образцов.

4. Обсуждение результатов

В синтетическом кварце до облучения нейтронами наблюдалось практически одинаковое для всех образцов слабое рассеяние; разброс интенсивностей рассеяния I_{init} для различных образцов кварца с начальными плотностями дислокаций $\rho = 54$ и 570 cm^{-2} составлял менее 10% [13].

Далее рассматривается прирост интенсивности рассеяния $\Delta I(\mathbf{q}) = I_{\text{irr}} - I_{\text{init}}$ в зависимости от флюенса нейтронов, где I_{irr} — интенсивность рассеяния от облученного кварца. Результаты обработки приведены на рис. 3 и 4. По оси абсцисс отложен переданный импульс в nm^{-1} , по оси ординат — прирост интенсивности рассеяния $\Delta I(\mathbf{q})$. Приведены также сплайн-функции.

Следует отметить, что облучение нейтронами изменяет не только структуру, но и оптические свойства образцов. При флюенсе нейтронов $F_2 = 7.7 \cdot 10^{17} \text{ n/cm}^2$ начинает темнеть кварц с плотностью дислокаций $\rho = 570 \text{ cm}^{-2}$, что обусловлено примесями алюминия, который всегда содержится в кварце и замещает атомы кремния в узлах решетки [7].

На рис. 3 показана разность интенсивностей рассеяния между облученными и исходными образцами $\Delta I(\mathbf{q}) = I_{\text{irr}} - I_{\text{init}}$ для кварца с малым числом дислокаций

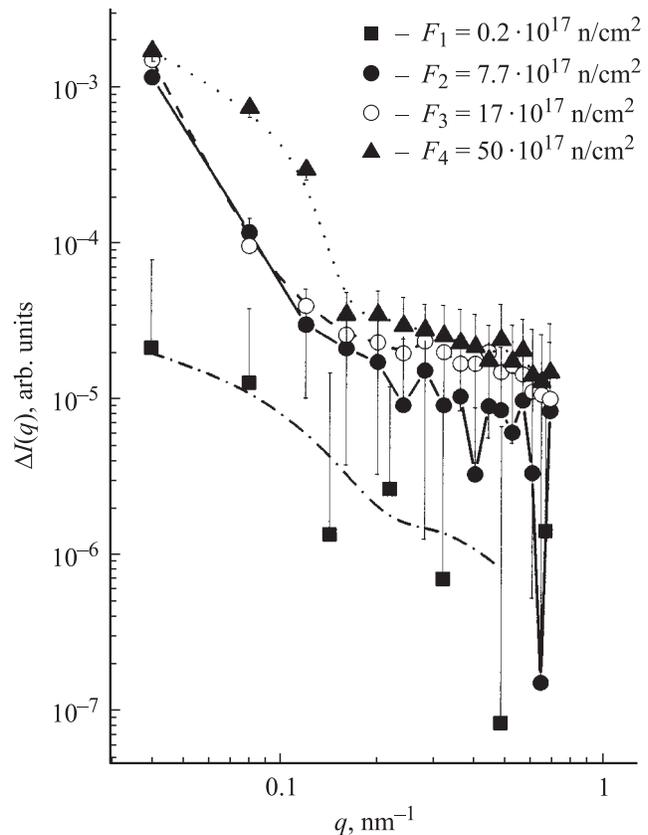


Рис. 3. Прирост интенсивностей нейтронного рассеяния $\Delta I(q)$ для кварца с начальной плотностью дислокаций $\rho = 54 \text{ cm}^{-2}$ после облучения его быстрыми нейтронами флюенсом F . Линии — сплайн-функции.

$\rho = 54 \text{ cm}^{-2}$. При флюенсе $F_1 = 0.2 \cdot 10^{17} \text{ n/cm}^2$ наблюдается небольшой прирост интенсивности рассеяния, при больших флюенсах F_2 , F_3 и F_4 интенсивность рассеяния существенно выросла, что свидетельствует о значительном увеличении количества дефектов. Подобная же картина в кварце наблюдается и для кварца с начальной плотностью дислокаций $\rho = 570 \text{ cm}^{-2}$ при тех же флюенсах (рис. 4).

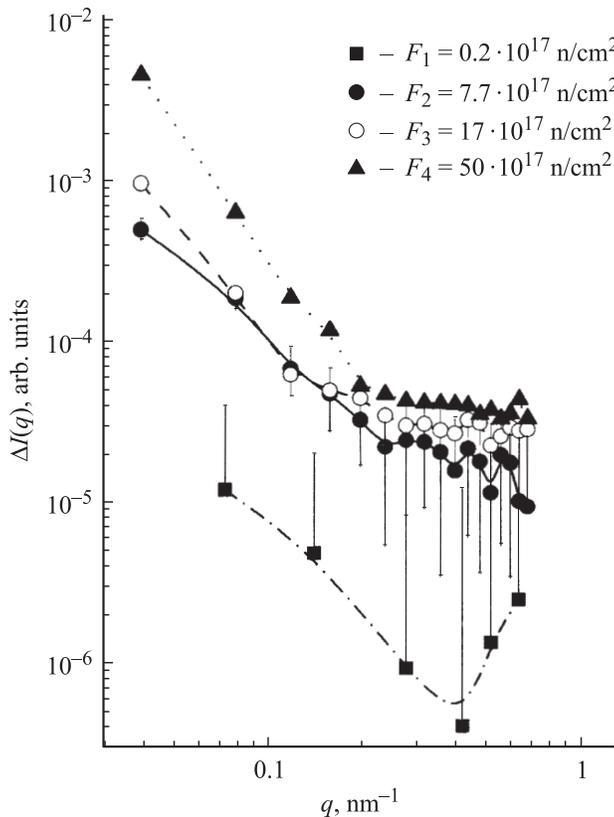


Рис. 4. Прирост интенсивностей нейтронного рассеяния $\Delta I(q)$ для кварца с начальной плотностью дислокаций $\rho = 570 \text{ cm}^{-2}$ после облучения его быстрыми нейтронами флюенсом F . Линии — сплайн-функции.

Были проанализированы радиационные повреждения в кварце в диапазоне флюенсов нейтронов $F_1 = 0.2 \cdot 10^{17} \text{ n/cm}^2 - F_4 = 5 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$ с учетом точечных рассеивателей (вакансии, атомы в междоузлиях), протяженных структур (дорожки из достаточно удаленных друг от друга пар, состоящих из атома в междоузлии и вакансии) и крупных глобулярных дефектов (пики смещения или термические пики) с помощью функции рассеяния

$$\Delta I(\mathbf{q}) = \mathbf{q}^{-1} A_L \cdot \exp[-(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_g)^2/2] + B_P + I_0 \cdot \exp[-(\mathbf{q} \cdot R_G)^2/3]. \quad (1)$$

Здесь $B_P = \text{const}$ характеризует интенсивность некогерентного рассеяния от точечных дефектов. Вклад протяженных дефектов с поперечным радиусом инерции r_g определяется параметром A_L , а вклад пиков смеще-

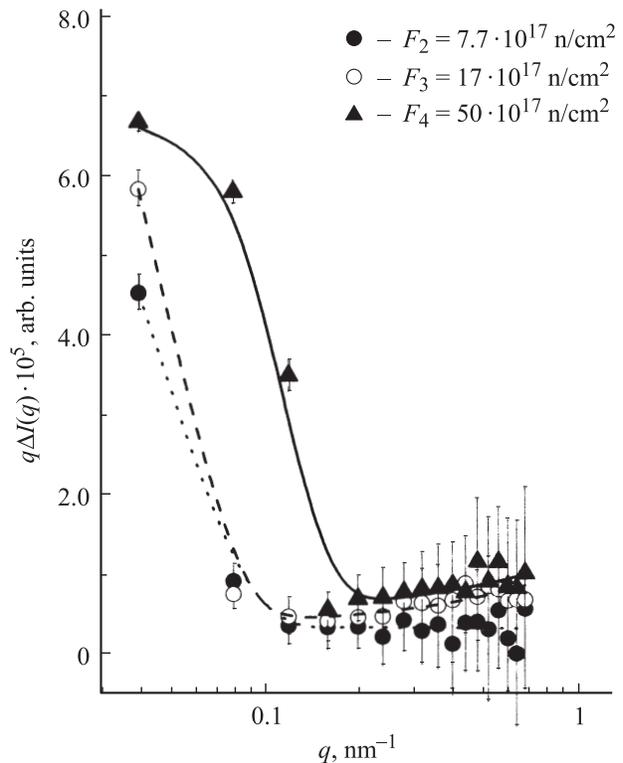


Рис. 5. Описание экспериментальных данных нейтронного рассеяния функцией (1) для кварца с плотностью дислокаций $\rho = 54 \text{ cm}^{-2}$, полученных после облучения образцов быстрыми нейтронами.

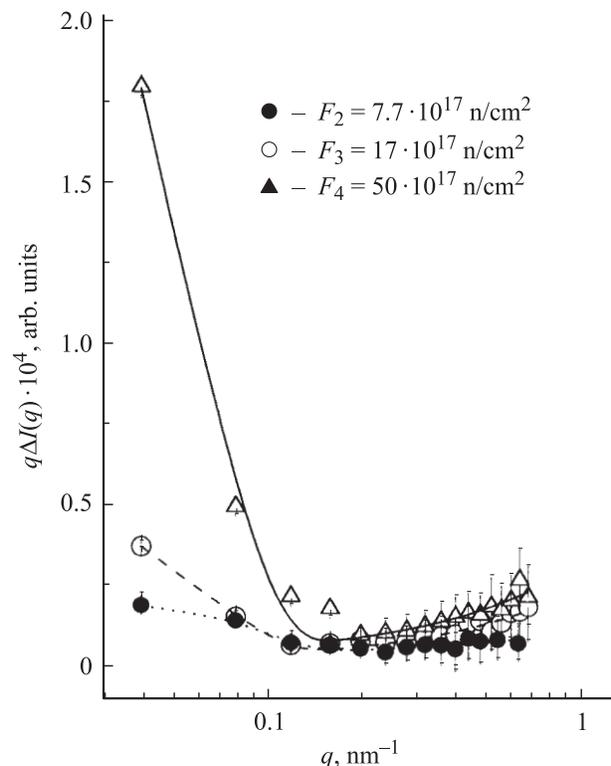


Рис. 6. Описание экспериментальных данных нейтронного рассеяния функцией (1) для кварца с плотностью дислокаций $\rho = 570 \text{ cm}^{-2}$, полученных после облучения образцов быстрыми нейтронами.

ния (аморфных областей) с радиусом инерции R_G — интенсивностью I_0 при $\mathbf{q} \rightarrow 0$. Результаты анализа по формуле (1) приведены на рис. 5 и 6. Для удобства по оси ординат интенсивности рассеяния представлены в виде $\mathbf{q} \cdot \Delta I(\mathbf{q})$. Левая часть спектра ($\mathbf{q} < 0.1 \text{ nm}^{-1}$) относится к рассеянию на глобулярных дефектах, правая ($\mathbf{q} > 0.2 \text{ nm}^{-1}$) — на точечных, переходная область — к рассеянию на протяженных структурах.

Динамика изменения параметров дефектов при облучении синтетического кварца нейтронами показана на рис. 7 и 8. Отметим, что для образцов кварца с различными начальными плотностями дислокаций $\rho = 54$ и 570 cm^{-2} эволюция параметров дефектов при облучении нейтронами подобна (рис. 7 и 8).

Глобулярных областей аморфизации в исходных кристаллах синтетического кварца не наблюдалось. Они появляются при облучении нейтронами как включения другой фазы, а не дефекты самой решетки. Радиус инерции для таких крупных дефектов $R_G \sim 40\text{--}50 \text{ nm}$.

Радиус инерции дефектов типа цилиндрических каналов (треков) найден равным $r_g = 1.4\text{--}1.6 \text{ nm}$, причем он практически не меняется с ростом флюенса нейтронов.

Таким образом, в облученном быстрыми нейтронами кварце генерируются все типы дефектов. Размер крупных дефектов возрастает в силу их взаимодействия между собой и с исходными дефектами. Интересно, что большая плотность исходных дислокаций замедляет развитие глобулярных дефектов. В кварце с $\rho = 570 \text{ cm}^{-2}$

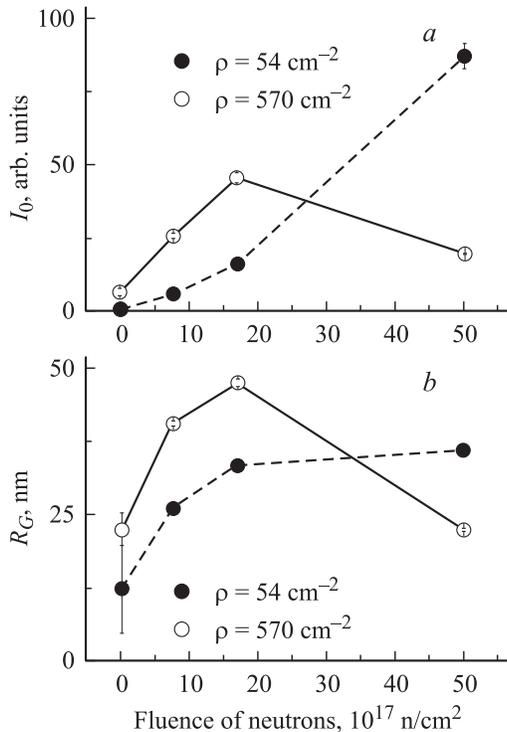


Рис. 7. Параметры глобулярных дефектов для образцов кварца с начальными плотностями дислокаций $\rho = 54$ и 570 cm^{-2} . *a* — интенсивность нейтронного рассеяния I_0 ; *b* — радиус инерции R_G крупных дефектов.

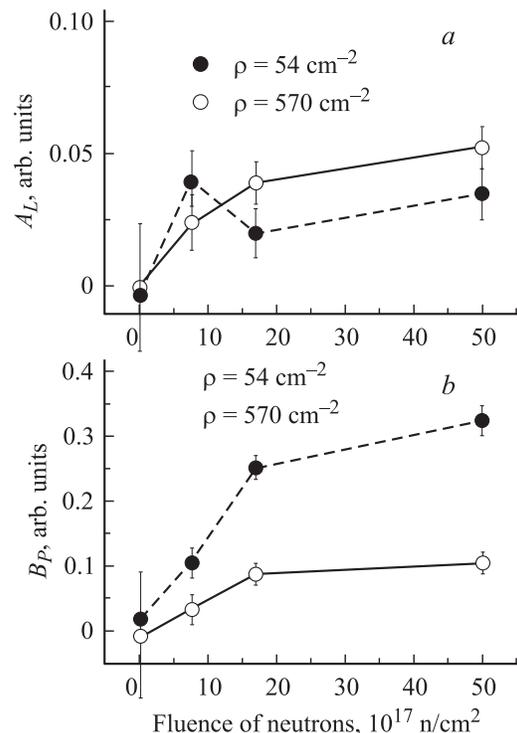


Рис. 8. Параметры интенсивности нейтронного рассеяния для протяженных и точечных дефектов для образцов кварца с начальной плотностью дислокаций $\rho = 54$ и 570 cm^{-2} . *a* — параметр интенсивности рассеяния A_p для протяженных дефектов; *b* — параметр интенсивности некогерентного рассеяния B_L для точечных дефектов.

их размер и количество меньше, чем в образце с меньшей начальной плотностью дислокаций ($\rho = 54 \text{ cm}^{-2}$) (рис. 7). Для других видов дефектов подобного явления не наблюдается (рис. 8).

Для оценки объемной доли дефектов φ , возникающих в искусственном кварце при облучении нейтронами, в тех же условиях (диафрагма на образце $6 \cdot 6 \text{ mm}^2$, $t = 20^\circ \text{C}$) измерена интенсивность рассеяния на модельном образце. Известно, что полиметилметакрилат (ПММА) толщиной 1 mm рассеивает практически так же, как слой воды толщиной 1 mm в аналогичных условиях. Поэтому мы заменили стандартную калибровку по H_2O (1 mm) на более удобную — по стеклу ПММА, используя известное значение сечение рассеяния для 1 cm^3 воды в единицу телесного угла $d\sigma/d\Omega = 0.762 \text{ cm}^{-1}$ при длине волны $\lambda_n = 0.3 \text{ nm}$. Интенсивность рассеяния на образце ПММА составила $I_{GL} = 3.386 \cdot 10^{-5}$ в произвольных единицах. Зная толщину калибровочного образца (0.1 cm) и кварца (1 cm), можно вычислить дифференциальное сечение нейтронного рассеяния на 1 cm^3 для образцов кварца $d\sigma/d\Omega$ из приведенных выше интенсивностей рассеяния в произвольных единицах I_S (рис. 5 и 6)

$$\sigma = d\sigma/d\Omega = 0.0762 \cdot (I_S/I_{GL}). \quad (2)$$

Таблица 1. Сечения нейтронного рассеяния и характеристики глобулярных дефектов в облученном быстрыми нейтронами синтетическом кварце с начальной плотностью дислокаций $\rho = 54 \text{ cm}^{-2}$

Флюенс нейтронов, $10^{17} \times \text{n/cm}^2$	Сечение рассеяния $\sigma_G, \text{ cm}^{-1}$	Радиус глобулярных дефектов $R_G, \text{ nm}$	Концентрация глобулярных дефектов $N_G, 10^{12} \text{ cm}^{-3}$	Объемная доля $\varphi_G, \%$
0.2	1.39 ± 0.33	28.8 ± 3.6	7.9	0.079
7.7	5.74 ± 0.16	52.2 ± 0.7	0.92	0.055
18	10.15 ± 0.42	61.6 ± 1.0	0.60	0.059
50	4.49 ± 0.12	29.0 ± 0.5	24.5	0.25

Таблица 2. Сечения нейтронного рассеяния и характеристики глобулярных дефектов в облученном быстрыми нейтронами синтетическом кварце с начальной плотностью дислокаций $\rho = 570 \text{ cm}^{-2}$

Флюенс нейтронов, $10^{17} \times \text{n/cm}^2$	Сечение рассеяния $\sigma_G, \text{ cm}^{-1}$	Радиус глобулярных дефектов $R_G, \text{ nm}$	Концентрация глобулярных дефектов $N_G, 10^{12} \text{ cm}^{-3}$	Объемная доля $\varphi_G, \%$
0.2	0.043 ± 0.040	16.0 ± 9.7	8.3	0.014
7.7	1.23 ± 0.07	33.6 ± 0.9	2.8	0.044
18	3.54 ± 0.08	42.9 ± 0.6	1.8	0.061
50	19.6 ± 1.0	46.6 ± 1.1	6.3	0.26

Таблица 3. Сечения нейтронного рассеяния и концентрации точечных дефектов в облученном кварце с плотностями начальных дислокаций $\rho = 54$ и 570 cm^{-2}

Флюенс нейтронов, $10^{17} \times \text{n/cm}^2$	Сечение рассеяния $\sigma_p, \text{ cm}^{-1}$		Доля точечных дефектов $\varphi_p, \%$	
	$\rho = 54 \text{ cm}^{-2}$	$\rho = 570 \text{ cm}^{-2}$	$\rho = 54 \text{ cm}^{-2}$	$\rho = 570 \text{ cm}^{-2}$
0.2	—	0.0044 ± 0.0040	—	0.3
7.7	0.007 ± 0.005	0.024 ± 0.006	0.4	1
18	0.020 ± 0.004	0.056 ± 0.004	1	3
50	0.024 ± 0.004	0.073 ± 0.005	1	4

Для того чтобы из сечений σ_G найти концентрации дефектов N_G и их объемные доли φ_G , предварительно была вычислена плотность длины когерентного ядерного рассеяния для α -кварца плотностью 2.65 g/cm^3

$$K = N_m \cdot b_m = 4.19 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}, \quad (3)$$

где $N_m = 2.66 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ — число молекул SiO_2 на единицу объема, $b_m = 1.58 \cdot 10^{-12} \text{ cm}$ — когерентная длина SiO_2 .

Контраст для крупных дефектов $\Delta K = (\Delta d/d) \cdot K$, т.е. пропорционален изменению плотности вещества $\Delta d/d$ при радиационных повреждениях. При полной аморфизации α -кварца (флюенс $2 \cdot 10^{20} \text{ n/cm}^2$) плотность вещества уменьшается [14,15]. Из диффузного рассеяния рентгеновских лучей установлено [15]: в α -кварце при флюенсе $3 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$ возникают аморфные области радиусом $\sim 1 \text{ nm}$, имеющие плотность на 9% ниже, чем в исходном α -кварце. Эти области занимают $\sim 4\%$ объема. В наших экспериментах накоплен близкий флюенс $F_4 = 5 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$, поэтому было принято $\Delta d/d = 10\%$. Тогда измеренное сечение $\sigma = (\Delta K)^2 \cdot N \cdot V^2 = (\Delta K)^2 \cdot \varphi \cdot V$, где $V = (4\pi/3) \cdot R_G^3$ — объем дефекта.

Исходя из этого, были вычислены концентрации N_G и объемные доли дефектов φ_G .

В табл. 1 и 2 приведены для обоих видов кварца ($\rho = 54$ и 570 cm^{-2}) сечения рассеяния σ_G , радиусы инерции R_G , концентрации N_G и объемные доли φ_G глобулярных дефектов как функции флюенса нейтронов.

Сравнивая параметры глобулярных дефектов в кристаллах облученного быстрыми нейтронами синтетического кварца (табл. 1 и 2), видно, что их объемная доля φ_G практически одинакова и не зависит от начального числа дислокаций. Начальная концентрация дислокаций влияет в основном на размер и число дефектов. При введении большего числа дислокаций размер дефектов стал меньше. Следовательно, дислокации действуют как центры коагуляции, притягивающие дефекты. При большем числе центров дефекты мельче при сохранении суммарного объема.

Точечные и протяженные дефекты всегда присутствуют в решетке. Ее напряжения вокруг неупорядоченных областей стимулируют рост дислокаций, взаимодействующих с исходными и новыми дефектами с образованием сетки дислокаций, скоплений вакансий и нанопор.

Далее из интенсивностей некогерентного рассеяния были вычислены абсолютные сечения σ_p для точечных

Таблица 4. Сечения нейтронного рассеяния и параметры протяженных дефектов в облученном кварце с плотностями начальных дислокаций $\rho = 54 \text{ см}^{-2}$

Флюенс нейтронов, $10^{17} \times \text{н/см}^2$	Параметр сечения A_L , 10^4 см^{-2}	Суммарная длина каналов L_T , 10^{10} см/см^3	Объемная доля каналов φ_L , %
0.2	—	—	—
7.7	5.4 ± 2.5	6.2 ± 2.8	0.8 ± 0.4
18	8.8 ± 1.8	10.1 ± 2.1	1.3 ± 0.3
50	11.7 ± 1.8	13.4 ± 2.1	1.7 ± 0.3

Таблица 5. Сечения нейтронного рассеяния и параметры протяженных дефектов в облученном кварце с плотностями начальных дислокаций $\rho = 570 \text{ см}^{-2}$

Флюенс нейтронов, $10^{17} \times \text{н/см}^2$	Параметр сечения A_L , 10^4 см^{-2}	Суммарная длина каналов L_T , 10^{10} см/см^3	Объемная доля каналов φ_L , %
0.2	—	—	—
7.7	8.9 ± 2.5	10.2 ± 2.9	1.3 ± 0.4
18	4.5 ± 2.0	5.1 ± 2.3	0.6 ± 0.3
50	7.9 ± 2.3	9.0 ± 2.6	1.1 ± 0.3

дефектов (табл. 3). Взяв характерный объем точечного дефекта $\sim 1 \text{ нм}^3$ при максимальном контрасте $\Delta K = K$, можно оценить объемную долю мелких повреждений $\varphi_P \sim 1-4\%$ при флюенсе $F \leq 5 \cdot 10^{18} \text{ н/см}^2$.

Остановимся на протяженных радиационных дефектах (табл. 4 и 5). При описании экспериментальных данных функцией (1) в кварцах с $\rho = 54$ и 570 см^{-2} при каждом флюенсе нейтронов найден пропорциональный сечению параметр $A_L = \pi \cdot \Delta K_L^2 \cdot V_L^2 N_L / L$, где $\Delta K_L = 0.1 \cdot K$ — контраст дефекта в кристалле, L — длина, $V_L = \pi r^2 L$ — объем канала, N_L — число каналов в 1 см^3 . Контраст взят таким же, как для крупных областей неупорядочения. При разных флюенсах в образце кварца с $\rho = 54 \text{ см}^{-2}$ радиусы инерции для каналов оказались близкими: $r_g = 1.63 \pm 0.74 \text{ нм}$ при $F_2 = 7.7 \cdot 10^{17} \text{ н/см}^2$; $r_g = 1.49 \pm 0.33 \text{ нм}$ при $F_3 = 1.7 \cdot 10^{18} \text{ н/см}^2$; $r_g = 1.43 \pm 0.25 \text{ нм}$ при $F_4 = 5 \cdot 10^{18} \text{ н/см}^2$.

В кварце с $\rho = 570 \text{ см}^{-2}$ для флюенса $F_2 = 7.7 \cdot 10^{17} \text{ н/см}^2$ радиус инерции канала $r_g = 1.45 \pm 0.49 \text{ нм}$. Поэтому в расчетах был принят средний радиус инерции $r_g = 1.46 \text{ нм}$ и радиус канала $r = \sqrt{2} \cdot r_g = 2 \text{ нм}$. Затем была оценена суммарная длина $L_T = L \cdot N_L$ и объемная доля каналов φ_L (табл. 4 и 5).

5. Заключение

Анализ структуры радиационных дефектов в кварце показывает, что быстрые нейтроны создают в решетке точечные, протяженные и объемные дефекты. Крупные глобулярные структуры достигают размеров до 100 нм ,

занимая малый суммарный объем $\sim 0.3\%$ даже при максимальном флюенсе $5 \cdot 10^{18} \text{ н/см}^2$. Основной объем повреждений (до $\sim 5\%$) приходится на точечные и линейные дефекты, вносящие сопоставимые вклады $\sim 1-4\%$.

Протяженные структуры радиусом $\sim 2 \text{ нм}$ даже при умеренном флюенсе нейтронов $F = 7.7 \cdot 10^{17} \text{ н/см}^2$ имеют значительную интегральную длину на единицу объема: $L_T \sim 10^{11} \text{ см/см}^3$.

Формируют ли эти каналы связную сетку, в которой возможна миграция (протекание) посторонних атомов (или молекул)? Если каналы образуют сетку из связей длиной L_1 , то в единице объема будет $\sim 1/L_1^3$ связей. Из суммарной длины $L_T \sim 10^{11} \text{ см/см}^3 = L_1/L_1^3$ можно получить оценку длины связи $L_1 \sim 1/\sqrt{L_T} \sim 30 \text{ нм}$. В кварце максимум распределения смещенных атомов вдоль пробега ионов находится на расстоянии $36-130 \text{ нм}$ для выбитых быстрым нейтроном ионов кислорода (энергии $20-100 \text{ кеВ}$) и $18-80 \text{ нм}$ для ионов кремния (энергии $20-100 \text{ кеВ}$) [7,8], поэтому появление сетки с ячейкой размером $\sim 30 \text{ нм}$ вполне реально. Подобные сетчатые структуры наблюдались в металлах, облученных быстрыми нейтронами [12].

Список литературы

- [1] E. Roedder. Miner. Soc. Amer. **14**, 644 (1984).
- [2] J.L.R. Touret. Lithos **55**, 1 (2001).
- [3] D.E. Granger, P.F. Muzikar. Earth Planet. Sci. Lett. **188**, 269 (2001).
- [4] K.J. Kim, P.A.J. Englert. Earth Planet. Sci. Lett. **223**, 113 (2004).
- [5] B.E. Lehmann, H.N. Waber, I.N. Tolstikhin, I.L. Kamensky, M. Gannibal, E. Kalashnikov, B. Pevzner. Geophys. Res. Lett. **30**, 3, 1128 (2003).
- [6] А.Р. Силинь, А.Н. Трухин. Точечные дефекты и элементарные возбуждения в кристаллическом и стеклообразном SiO_2 . Зинатне, Рига (1985). С. 36.
- [7] Ш.А. Вахидов, Э.М. Гасанов, М.И. Самойлович, У. Яркулов. Радиационные эффекты в кварце. ФАН, Ташкент (1975). 187 с.
- [8] Радиационно-стимулированные явления в кислородсодержащих кристаллах. Сборник / Под ред. Ш.А. Вахидова. ФАН, Ташкент (1978). 264 с.
- [9] E. Kalashnikov, I.N. Tolstikhin, B.E. Lehmann, B.Z. Pevzner. J. Phys. Chem. Sol. **64**, 2293 (2003).
- [10] B.A. Mamyrin, I.N. Tolstikhin. In: Developments in Geochemistry 3. Elsevier Sci. Pub., Amsterdam (1984). 273 p.
- [11] T.W. Trull, M.D. Kurz, W.J. Jenkins. Earth Planet. Sci. Lett. **101**, 241 (1991).
- [12] М. Томпсон. Дефекты и радиационные повреждения в металлах. Мир, М., (1971). 368 с.
- [13] V.M. Lebedev, V.T. Lebedev, S.P. Orlov, K.A. Konoplev, I.N. Tolstikhin. Cryst. Rep. **49**, 1, 89 (2004).
- [14] J.B. Bates, R.W. Hendricks, L.B. Shaffer. J. Chem. Phys. **61**, 10, 4163 (1974).
- [15] D. Grasse, O. Kocar, H. Peisl, S.C. Moss, B. Golding. Phys. Rev. Lett. **46**, 4, 261 (1981).