

© Муссаева М. А., Ибрагимова Э. М., Бузриков Ш. Н.

РАДИАЦИОННО-СТИМУЛИРОВАННЫЕ ПРОЦЕССЫ В ОБЛУЧАЕМОМ ЭЛЕКТРОНАМИ ЩЕЛОЧНО-СИЛИКАТНОМ СТЕКЛЕ

*Институт ядерной физики Академии наук,
Узбекистан, 100214, Ташкент, пос. Улугбек
e-mail: ibragimova@inp.uz, mussaeva@inp.uz*

Исследовано формирование локализованного заряда при электронном облучении бесцветного силикатного стекла, содержащего Na, K и Ba. Облучение проводили в режиме стерилизации на воздухе при комнатной температуре на ускорителе электронов «Электроника У-003» (средняя энергия 4 МэВ). Интегральный флюенс накапливался в 6 этапов последовательного облучения от $1.8 \cdot 10^{13}$ до $1.8 \cdot 10^{15}$ эл/см², что соответствовало экспозиционным дозам от 0.3 до 30 МР. Облучение создает стабильную темнокоричневую окраску стекла, которая защищает лекарственные препараты от воздействия света. В спектрах поглощения обнаружен зависящий от накопленной дозы красный сдвиг края поглощения от 300 до 500 нм, характерный для заряженных металлосодержащих наночастиц размером до 20—30 нм.

Ключевые слова: щелочно-силикатные стекла, облучение электронами, спектры поглощения, центры окраски, наночастицы металла.

Введение. Силикатное стекло широко используется как химически инертный материал для флаконов и ампул, вмещающих жидкие лекарственные препараты. При стерилизации в γ -источниках и особенно в ускорителях электронов важно знать как изменяются параметры ионизирующего излучения при прохождении через стекло толщиной 1—2 мм, чтобы оценить качество стерилизации медикаментов.

Одной из проблем физики конденсированного состояния и микроэлектроники является снижение диэлектрической постоянной k между слоями микросхем. Силикатные стекла, имеющие низкую величину k , используют как межслойный диэлектрик. Снижение k можно достичь уменьшением показателя преломления n путем создания межфазных границ в стекле с порами или инородными включениями в процессе спекания стекла или радиационного воздействия. В работе [1] сообщается, что при облучении нанопористого силикатного стекла электронами с энергией 20 кэВ дозой 20 МКл/см² значительно усиливается люминесценция в полосах 500—700 и 900—950 нм из-за увеличения количества связей Si—H и Si—OH при растекании электронов по сквозным порам стекла. Авторами [2] экспериментально исследована модификация приповерхностных слоев силикатного стекла K8, содержащего оксиды B, Na, K, Ba, при воздействии пучков электронов с энергией 20—50 кэВ дозами 20—50 МКл/см². В приповерхностном слое стекла формируется градиентный оптический волновод с увеличением показателя преломления на оси волновода до значений

$\Delta n = 0.01—0.04$. Показано, что послойный рост и снижение показателя преломления в глубинных слоях стекла вызваны миграцией ионов щелочных металлов в область отрицательного объемного заряда и структурным разрушением сетки стекла. При энергии электронов < 10 кэВ на поверхности стекол, содержащих, например, Ag, в зависимости от дозы облучения формируется пленка или наночастицы серебра размером менее 20 нм [3].

Эффективность образования радиационных дефектов зависит от содержания примесей в матрице. Показано, что в зависимости от дозы облучения электронами с энергией 4 МэВ и флюенсами от $0.8 \cdot 10^{14}$ см $^{-2}$ до $1.3 \cdot 10^{15}$ см $^{-2}$ при температурах образцов 20 и 250 °С существенно изменяются эффективность введения и характер распределения радиационных дефектов в различных областях диффузионных кремниевых $p^+—n—n^+$ -структур [4].

Ранее экспериментально было установлено [5], что при облучении стекла в тепловой колонне атомного реактора или в гамма-установке Co-60 происходят фазовые превращения кристобалита SiO_2 в тридимит, BaO в BaO_2 и $BaSiO_3$. Локализация носителей заряда на межфазных границах вызывает коричневую окраску, ослабление интенсивности люминесценции, уменьшение микротвердости в результате снятия механических напряжений.

Цель данной работы — определение оптических центров (поглощение и рассеяние), наведенных в щелочносиликатном стекле при облучении ускоренными электронами.

Экспериментальная часть. Для исследования использовали бесцветное силикатное стекло (синтезировано в ГОИ более 30 лет назад). Измерения на сканирующем электронном микроскопе EVO MA10 (Zeiss) с энергодисперсионной системой EDS (Oxford Instrum) показали, что в составе бесцветного силикатного стекла присутствует 11 мас. % Na, 10 мас. % K и 5 мас. % Ba, т. е. в сумме до 30 мас. %, как в стекле марки К8 [2, 3, 5]. Образцы имели форму полированных дисков диаметром 16 мм и толщиной 2 мм. Для имитации режима стерилизации медицинских препаратов образцы стекла заворачивали в Al-фольгу толщиной 150 мкм и облучали на воздухе при комнатной температуре на ускорителе электронов «Электроника У-003» (средняя энергия 4 МэВ, плотность тока пучка 50 нА/см 2 , импульс тока 4.5 мкс, поток $0.3 \cdot 10^{12}$ эл/см 2 с). Интегральный флюенс накапливался в 6 этапов последовательного облучения от $1.8 \cdot 10^{13}$ до $1.8 \cdot 10^{15}$ эл/см 2 , что соответствовало экспозиционной дозе от 0.3 до 30 МР. Глубину проникновения электронов в материал (R_0) определяли по выражению Канайа-Окаяма [6]:

$$R_0 = 0.0276 AE_0^{1.67} / \rho Z^{0.889}, \quad (1)$$

где R_0 — глубина проникновения электронов в мишень (нм), E_0 — энергия первичных электронов (кэВ), Z — атомный номер, A — атомный вес (г/моль), ρ — плотность материала мишени (г/см 3). Энергию электронов принимали равной 4000 кэВ. В литературе известна расчетная величина проникновения электронов в Al-фольгу:

$$R_{Al} = 0.407E^{1.38} \text{ (г/см}^2\text{) (формула Физера).} \quad (2)$$

В нашем случае:

$$R = 0.542 \cdot E_e - 0.133 \text{ (г/см}^2\text{) для } 0.8 \text{ МэВ} < E_e < 3 \text{ МэВ}, \quad (3)$$

равная 2.54 г/см 2 для электронов с энергией 5 МэВ [7—11], а также экспериментальное значение пробега электронов с энергией 6 МэВ, равное 150—310 мкм [12], при толщине используемой нами Al фольги 150 мкм. Для сложного многоэлементного щелочно-силикатного стекла с учетом массового содержания всех элементов рассчитаны средние значения атомного веса $A = 22.78$ г/мол и заряда $Z = 11.49$. Глубина

проникновения электронов в данное стекло плотностью $\rho = 2.9 \text{ г/см}^3$, рассчитанная по формуле (1), составляет $R_0 = 25644.8 \text{ нм} = 25.6 \text{ мкм}$, что намного меньше толщины образцов 2 мм, и обеспечивает неоднородное накопление неравновесного заряда в объеме диэлектрика. Следует отметить, что на выходе из Al фольги на стекло падает ослабленный рассеянием пучок электронов, но в сопровождении с тормозным рентгеновским и гамма-излучением. Спектры оптического поглощения снимали на спектрофотометре СФ-56 (ЛОМО) в интервале длин волн 190—1100 нм и оптических плотностей до 5 при спектральной щели 5 нм, рекомендованной для сильно поглощающих (рассеивающих) материалов.

Результаты и их обсуждение. Оптический спектр необлученного стекла не содержит селективных полос поглощения, уровень ахроматического рассеяния не превышает $D = 0.1$, а УФ-край спектра находится при 275 нм, что обусловлено присутствием катионов щелочных металлов и бария. Нестабильный резонанс при 215 нм появляется при повторных измерениях, что может быть связано с плазмонным поглощением атомов К после захвата ими электронов ($K^+ + e^- \rightarrow K^0$). Спектры поглощения, снятые сразу после облучения и представленные на рис. 1, характеризуют коричневую окраску, наведенную после первой дозы облучения, плотность которой

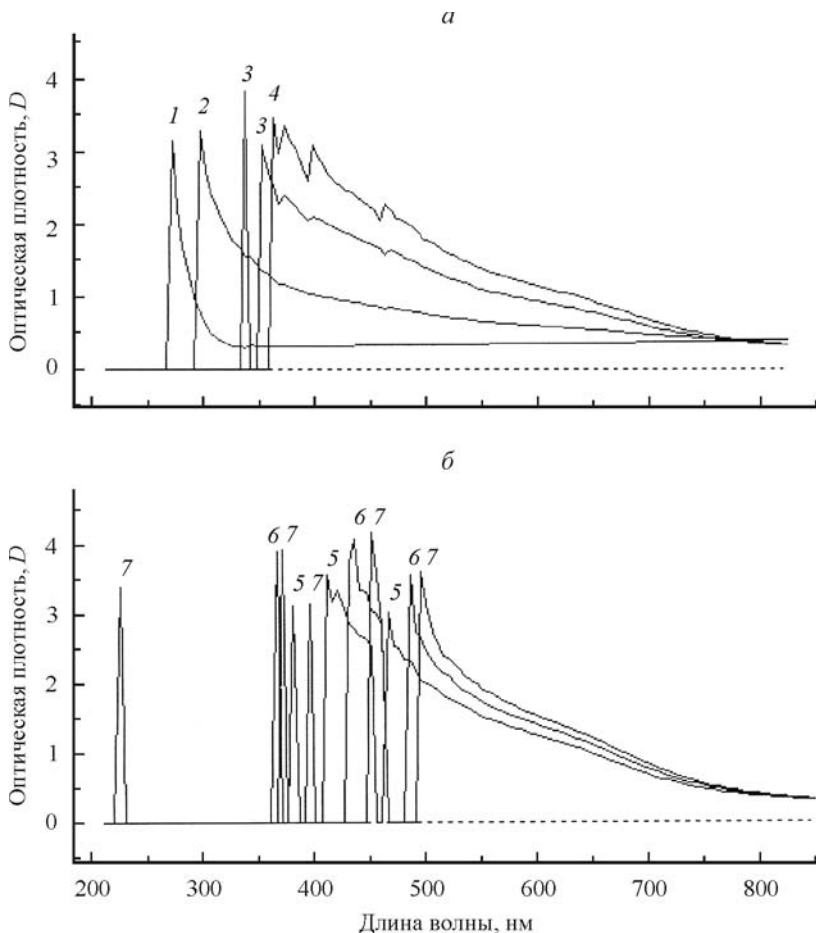


Рис. 1. а, б — спектры поглощения щелочно-силикатного стекла: необлученного (1) и после облучения электронами с энергией 4 МэВ при токе 50 нА с флюенсом: $1.8 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$ (2), $6.6 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$ (3), $1.6 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$ (4), $3.5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$ (5), $8.3 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$ (6), $1.8 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ (7).