Влияние γ -облучения на внутреннее трение в тетраборате лития

© В.С. Биланич, Н.Д. Байса*, В.М. Ризак, И.М. Ризак**

Ужгородский национальный университет,

88000 Ужгород, Украина

- * Киевский институт менеджмента и информационных технологий при Национальном авиационном университете, Киев, Украина
- ** Днепропетровский национальный университет, Днепропетровск, Украина

(Поступила в Редакцию 20 июня 2003 г.)

Исследовано влияние γ -облучения на механические свойства монокристаллического и стеклообразного тетрабората лития $Li_2B_4O_7$. Выявлено уширение температурного интервала диссипативного процесса при 380– $420\,\mathrm{K}$, а также существенное перераспределение интенсивностей в тонкой структуре пика внутреннего трения $Q^{-1}(T)$ монокристалла после облучения. В стеклообразном $Li_2B_4O_7$ после облучения на зависимости $Q^{-1}(T)$ вплоть до температуры $570\,\mathrm{K}$ не наблюдалось возрастания внутреннего трения, характерного для начала α -процесса релаксации в данном материале. Показано, что отжиг облученных образцов при $570\,\mathrm{K}$ в течение 1 часа позволяет практически полностью восстановить их механические свойства.

Благодаря удачному сочетанию физических свойств тетраборат лития (ТБЛ) нашел применение в акустических устройствах, нелинейной оптике, дозиметрии [1,2]. Монокристалл ТБЛ устойчив к воздействию γ -облучения с энергией 1.3 MeV при дозах $\Phi \leq 10^6$ Gy [3]. Исследования радиационной устойчивости стеклообразного ТБЛ не проводились. Ранее на основании исследований инфранизкочастотных механических свойств ТБЛ в монокристаллическом [4] и стеклообразном [5] состояниях были выявлены термически активированные диссипативные процессы в данных материалах, отражающие структурную подвижность в катионной подсистеме.

Учитывая литературные данные по радиационной стойкости монокристалла ТБЛ [3], естественно предположить, что возникновение радиационно-индуцированных структурных дефектов в ТБЛ будет сопровождаться изменением и таких характеристик данного соединения, как внутреннее трение Q^{-1} и модуль сдвига G.

В зависимости от режима охлаждения расплава ТБЛ может быть получен как в кристаллическом, так и в стеклообразном состоянии [6,7]. Возможность проведения измерений на кристаллических и стеклообразных образцах ТБЛ идентичного по стехиометрии и неконтролируемым примесям состава позволяет корректно сопоставить полученные результаты, а также исследовать влияние степени упорядоченности структуры соединения на наблюдаемые эффекты.

Цель настоящей работы — исследование влияния γ -облучения на инфранизкочастотное внутреннее трение тетрабората лития в стеклообразном и монокристаллическом состояниях.

1. Методика эксперимента

Монокристаллический и стеклообразный ТБЛ получали согласно методикам [6,7]. Образцы для исследований в виде прямоугольных параллелепипедов размером

 $2\times2\times20\,\mathrm{mm}$ изготовлялись из монокристаллов, ориентированных вдоль направления [001], и стеклообразных слитков. Стеклообразное и монокристаллическое состояния $\mathrm{Li}_2\mathrm{B}_4\mathrm{O}_7$ были подтверждены при помощи рентгенофазового, дифференциально-термического и микроструктурного методов анализа.

Измерение внутреннего трения Q^{-1} и модуля сдвига G проводилось на автоматизированной экспериментальной установке на основе крутильного маятника [8]. Зависимости $Q^{-1}(T)$ и G(T) были получены в режим нагрева с постоянной скоростью $v_h=37.5\,\mathrm{K\cdot h}^{-1}$ при непрерывном циклическом деформировании образца. Облучение образцов осуществлялось на радиационном стенде [9] микротрона М-30 Института электронной физики НАН Украины. Энергия тормозных гамма-квантов составляла $15\,\mathrm{MeV}$, а поглощенная доза — $2.5\cdot10^5\,\mathrm{Gy}$. Точность определения дозы составляла 6%.

2. Результаты исследований и их обсуждение

На рис. 1 и 2 приведены зависимости $Q^{-1}(T)$ и G(T)исходных, облученных и термоциклированных образцов монокристаллического и стеклообразного Li₂B₄O₇. рисунков видно, что на зависимостях $Q^{-1}(T)$ для монокристалла наблюдается максимум в интервале $390-410\,\mathrm{K}$ с амплитудой Q_m^{-1} и температурой пика T_m , сопровождающийся относительным скачком модуля сдвига $\frac{\Delta G}{G}$. Облучение существенно изменяет форму и параметры данной аномалии. Положение общего максимума внутреннего трения, четко проявлявшегося для исходного образца, почти не изменилось, однако слабо заметное плечо в спектре Q^{-1} исходного образца при 360-380 К после у-облучения превратилось в явно выраженный максимум с интенсивностью $Q_m^{-1} = 40 \cdot 10^{-3}$. Вследствие такого перераспределения интенсивностей в спектре Q^{-1} ширина температурного интервала и интенсивность данного диссипативного процесса значительно возрастают.

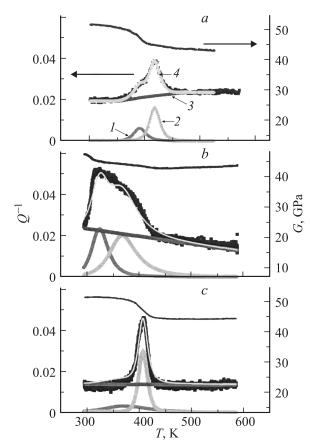


Рис. 1. Температуные зависимости внутреннего трения и модуля сдвига монокристалла $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (кристаллографическое направление [001]) на частоте 80 mHz при амплитуде деформации $8\cdot 10^{-5}$: a — исходный кристалл; b,c — первый и второй нагрев облученного кристалла соответственно. I,2 — аппроксимированные пики внутреннего трения; 3 — фон внутреннего трения; 4 — результирующая кривая.

Изменения механических свойств после облучения проявляются и на температурных зависимостях модуля сдвига. Как видно из рис. 1, на кривых G(T) четко проявляются два скачка модуля сдвига при $T<360~{\rm K}$ и $380 < T < 450~{\rm K}$, в то время как для исходного образца наблюдался только один скачок. Исходя из полученных нами результатов и особенностей проявляния диссипативных процессов на спектрах внутреннего трения в твердых телах [10], можно утверждать, что спектр внуреннего трения облученного кристалла ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$ в области температур $300-450~{\rm K}$ состоит из двух пиков Q^{-1} , которым соответствуют дефекты модуля сдвига ${\Delta G \over G}$.

Из рис. 2 видно, что облучение влияет на механические свойства и стеклообразного ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$. Для облученного стекла, так же как и для исходного, наблюдается максимум внутреннего трения, однако его ширина в этом случае почти вдвое больше, а расположение пика несколько сдвинуто в область низких температур. На зависимостях G(T) проявляется один скачок модуля сдвига при $350 < T < 420 \, {\rm K}$. Отметим, что на

кривых $Q^{-1}(T)$ облученного стекла вплоть до 600 K не заметен рост внутренного трения, в то время как на кривой $Q^{-1}(T)$ для исходного образца при T>520 K такое возрастание Q^{-1} (рис. 2), связанное с размягчением стекла ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$ [5], проявляется.

Из анализа полученных экспериментальных результатов следует, что облучение монокристалла ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$ приводит к появлению тонкой структуры пика внутренного трения, существенному перераспределению интенсивности в спектре Q^{-1} и уширению области диссипативного процесса. В облученном стекле ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$ при $500-600~{\rm K}$ не происходит возрастания механических потерь и податливости, характерного для области размягчения исходного необлученного образца.

Для разделения максимумов в спектре $Q^{-1}(T)$ и определения их параметров была выполнена математическая обработка полученных результатов. Как показано в [5,11], форма максимума внутреннего трения и соответствующего скачка модуля сдвига на температурных зависимостях данных параметров в $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ характерна для изменений механических свойств при релаксацион-

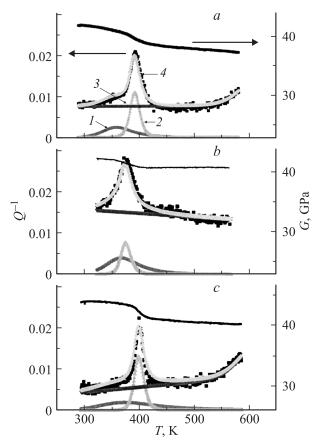


Рис. 2. Температурные зависимости внутреннего трения и модуля сдвига стеклообразного ${\rm Li_2B_4O_7}$ на частоте деформирования 30 mHz при амплитуде деформации $8\cdot 10^{-5}$: a — исходное стекло; b,c — первый и третий нагрев облученного стекла соответственно. I,2 — аппроксимированные пики внутреннего трения; 3 — фон внутреннего трения; 4 — результирующая кривая.

Параметры	Монокристалл Li ₂ B ₄ O ₇		Стеклообразный Li ₂ B ₄ O ₇	
	1	2	1	2
T_m , K	325	368	365	373
$Q_m^{-1} \cdot 10^3$	23	21	4	8
E, eV	0.48	0.64	0.41	1.45

Параметры математической аппроксимации двумя пиками спектров $Q^{-1}(T)$ облученных образцов ТБЛ (1 — параметры первого пика, 2 — параметры второго пика)

ных процессах. Аппроксиммация максимумов $Q^{-1}(T)$ проводилась в приближении дебаевского типа релаксации [12].

Для аппроксимации максимумов $Q^{-1}(T)$ использована зависимость [13]

$$Q^{-1} = Q_m^{-1} \frac{2\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2},\tag{1}$$

где $\omega=2\pi\nu,\ \nu$ — частота деформирования образца, Q^{-1} — текущее значение внутреннего трения, Q_m^{-1} — его максимальное значение, τ — время релаксации. Учитывая зависимость $\tau(T)$ при термической активации движения кинетической частицы

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E}{kT}\right),\tag{2}$$

где E — энергия активации, k — постоянная Больцмана, T — температура, τ_0 — предъэкспоненциальный коэффициент, получим формулу расчета зависимости $Q^{-1}(T)$ в области максимума

$$Q^{-1}(T) = Q_m^{-1} \frac{2 \exp \frac{E}{k} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_m}\right)}{1 + \exp \frac{2E}{k} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_m}\right)}.$$
 (3)

Подгонка расчетных максимумов внутренного трения при их экстраполяции двумя пиками $Q^{-1}(T)$ проводилась с использованием зависимости (3), при этом находились соответствующие параметры: T_m , Q_m^{-1} и E. Для данной модели математической обработки расчетные зависимости $Q^{-1}(T)$ хорошо согласуются с аналогичными экспериментальными. В результате математической аппроксимации спектров $Q^{-1}(T)$ облученных образцов двумя пиками и фоновой кривой найдены их параметры (см. таблицу).

Видно, что в спектре облученного монокристалла ${\rm Li_2B_4O_7}$ максимумы $Q^{-1}(T)$ характеризуются приблизительно одинаковой интенсивностью, но различными энергиями активации и температурами пиков на температурной шкале. Поскольку существенное возрастание амплитуды первого максимума связано с облучением, можно предположить, что в кристалле γ -радиация приводит к дополнительной генерации источников рассеивания энергии внешнего механического поля. Для стекла вследствие низкой интенсивности первого пика после облучения заметно только уширение пика $Q^{-1}(T)$

за счет возрастания количества кинетических частиц, обусловливающих появление максимума $Q^{-1}(T)$ для необлученного материала.

Возрастание интенсивности диссипации, а также площади под пиком $Q^{-1}(T)$ облученных образцов свидетельствует о возрастании концентрации и/или амплитуды колебаний кинетических частиц (источников поглощения механической энергии) под действием гармонически изменяющегося внешнего механического поля [10,12].

Для выявления возможности восстановления свойств данного материала после облучения было проведено измерение $Q^{-1}(T)$ G(T) облученных образцов при их термоциклировании с выдержкой при температуре 570 К на протяжении 1 h. Из рисунков видно, что после первого цикла термической обработки механические свойства кристалла в значительной мере восстанавливаются — низкотемпературный максимум $Q^{-1}(T)$ и ширина диссипативного процесса значительно уменьшаются, на зависимости G(T) наблюдается только один скачок.

В стеклообразном ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$ также происходит восстановление механических свойств. Так, после первого цикла отжига ширина максимума $Q^{-1}(T)$ уменьшается, а после второго — вновь наблюдается возрастание внутреннего трения в области $T>520~{\rm K}$, связанное с началом α -процесса релаксации данного материала.

Таким образом, в работе получены следующие результаты.

Исследованы общие закономерности влияния γ -облучения на инфранизкочастотные механические свойства монокристаллического и стеклообразного ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$.

Установлено, что γ -облучение монокристалла ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$ приводит к существеннному уширению температурной области диссипативного процесса при $300-450\,{\rm K}$. Возрастание температурного интервала и интенсивности диссипации проявляется в основном в виде резкого роста амплитуды пика внутреннего трения в области $320\,{\rm K}$, в результате чего в спектре облученного кристалла ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$ происходит перераспределение интенсивности поглощения механической энергии. В стеклообразном ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$ облучение приводит к уширению пика внутреннего трения, связанного с активацией подвижности ионов лития. После облучения стекла ${\rm Li}_2{\rm B}_4{\rm O}_7$ в области $520-570\,{\rm K}$ отсутствует возрастание $Q^{-1}(T)$, характерное для начала α -процесса релаксации. Нагрев облученных образцов от комнатной температуры

до 570 K и отжиг при этой температуре на протяжении одного часа приводит к существенному восстановлению механических свойств монокристаллического и стеклообразного $Li_2B_4O_7$.

Авторы благодарят В.М. Головея и О.О. Парлага (ИЭФ НАНУ) за предоставленные облученные образцы ТБЛ для измерений.

Список литературы

- [1] J. Filipiak, A. Majchrowski, T. Lukasiewicz. Archives of Acoustics 19, *I*, 131 (1994).
- [2] R. Komatsu, T. Sugawara, K. Sassa. Appl. Phys. Lett. 70, 26, 3492 (1997).
- [3] Я.В. Бурак, Б.Н. Копко, И.Т. Лысейко, А.О. Матковский, Р.Р. Слипецкий, У.А. Улманис. Изв. АН СССР. Неорган. матер. 25, 7, 1226 (1989).
- [4] В.С. Биланич, Н.Д. Байса, В.М. Ризак, И.М. Ризак, В.М. Головей. ФТТ 45, 1, 80 (2003).
- [5] В.С. Биланич, Н.Д. Байса, В.М. Ризак, И.М. Ризак, В.М. Головей. Укр. физ. журн. 47, 4, 396 (2002).
- [6] И.И. Турок, В.М. Головей, П.П. Пуга. Декларационный патент Украины № 32242, МПК⁶С01 B35/12.
- [7] А.Б. Каплун, А.Б. Мешалкин. Изв. РАН. Неорган. матер. **35**, *11*, 1349 (1999).
- [8] В.С. Биланич. Автореф. канд. дис. Ужгород. ун-т (1993).
- [9] V. Masljuk, O. Parlag, J. Gajnish. "Workshop 97": Nuclear Engineering. Praga. Chech. Republic. (1997). Vol. 4. P. 1463.
- [10] Труды IV Всесоюз. науч. конф. Релаксационные явления в твердых телах / Под ред. В.С. Постникова. Металлургия, М. (1968).
- [11] V.M. Rizak, I.M. Rizak, N.D. Baisa, V.S. Bilanych, K.V. Domoratski, V.V. Maslyuk, V.M. Holovey. Proc. IFM-10. Madrid, Spain (2001). P. 219.
- [12] Физическая акустика / Под ред. У. Мэзона. Мир, М. (1969).Т. 3. Ч.А. 579 с.
- [13] И.В. Андреев, Ю.С. Балашов, В.А. Ломовской. Физика и химия стекла **10**, *3*, 296 (1984).