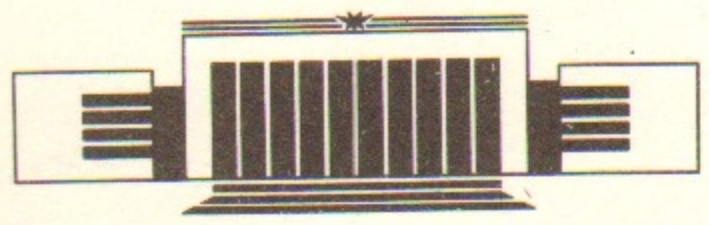




И.А. Белицкий, О. Давронов,
В.А. Дребушак, А.З. Паташинский

**РЕЛАКСАЦИЯ ПЛОТНОСТИ
МЕТАМИКТНОГО КРЕМНЕЗЕМА**

ПРЕПРИНТ 87-156



НОВОСИБИРСК

*И.А. Белицкий, О. Давронов,
В.А. Дребущак, А.З. Паташинский*

Институт ядерной физики
630090, Новосибирск 90, СССР

АННОТАЦИЯ

Методами дилатометрии, сканирующей калориметрии и калориметрии растворения изучен процесс термического отжига метамиктного состояния аморфного кремнезема, облученного быстрыми нейтронами. Обнаружено, что уменьшение плотности метамиктного состояния аморфного кремнезема происходит как при экзотермическом отжиге дефектов, так и при эндотермической перестройке локальной структуры.

Поток быстрых нейтронов при флюэнсе порядка 10^{20} б.н./см² переводит образцы кремнезема различных модификаций (кристаллы кварца, стекла) в метамиктное состояние, по своим свойствам отличное от исходного и не зависящее от начального состояния (см., например, [1, 2]). Модификации SiO₂ устойчивые при больших давлениях, например, коэсит не переходит в метамиктное состояние.

Природа метамиктного состояния исследовалась в ряде работ. В частности, в работе [3] приведены результаты исследования по релаксации плотности метамиктного кремнезема, хотя само название метамиктное состояние тогда не использовалось. Облученный кремнезем исследовался как некое состояние аморфной фазы SiO₂. Единственной измеряемой характеристикой этого состояния считается плотность. Зависимость плотности от температуры — монотонная плавная зависимость без скачкообразных изменений. Для обнаружения тонких различий термического поведения вещества при различных температурах измерение плотности явно нецелесообразно, поскольку с ее помощью невозможно фиксировать, к примеру, переходы в стеклообразных системах. В этом смысле гораздо более информативным параметром является коэффициент линейного расширения. Дифференцирование результатов измерений плотности не заменяет прямых измерений коэффициента линейного расширения, поскольку данные по плотности снимаются с большим интервалом по температуре из-за своей трудоемкости и точность полученных результатов дифференцирования неудовлетворительна. Метамиктное состояние (МС) оказывается аморфным. Плотность

МС составляет $2,27 \text{ г/см}^3$ при плотности α кварца $2,65$ и стекла $2,21$. Теплоемкость МС имеет характерную аномалию в области низких температур [4], свидетельствующую о наличии текстуры с размерами неоднородностей до сотен ангстрем; неоднородности такого масштаба обнаруживаются и другими методами [2].

Естественно искать связь этих неоднородностей с процессом образования МС. При ударе быстрого нейтрона в ядро Si или O этому ядру передается энергия $\delta E \approx \frac{m_n}{m_a} \cdot E_n$, где E_n — начальная энергия нейтрона (несколько МэВ), m_n и m_a — массы нейтрона и атома, соответственно. Выбитый со своего места атом ионизируется и летит сквозь среду, теряя энергию по механизму радиационных потерь. При этом производятся локальные дефекты. Когда скорость иона понизится до скорости электронов в атомах, его взаимодействие с атомами системы усиливается, происходит быстрое торможение, создается так называемый «термический пик». При этом свойства SiO_2 могут изменяться как вследствие только появления большой концентрации дефектов в среде, так и вследствие гипотетического процесса перестройки локальной структуры [5].

В связи с таким способом образования МС возникает важный вопрос о том, какие свойства МС связаны с предполагаемой измененной локальной структурой МС, а какие — с различного рода дефектами (вакансии, атомы внедрения, дислокации и т. д.). Подчеркнем, что речь идет о большой плотности дефектов. При исследовании сред с малой плотностью дефектов, возникающей при малых дозах нейтронов $10^{15} - 10^{17}$ б.н./ см^2 , возможно использование оптических и ЭПР методов [2]. При этом, однако, речь не идет о МС, а лишь о возможных микровключениях изолированных областей с другой структурой. В принципе возможно, что возникновение собственно МС требует некоторой критической концентрации дефектов [5].

Роль дефектов в картине свойств МС можно понять, изучая релаксационные процессы в МС при различных температурных режимах. При температурах комнатных и ниже, заметной релаксации МС не обнаружено. В области высоких температур при исследовании на высокотемпературном сканирующем дифференциальном калориметре Ландой с сотрудниками был обнаружен эффект отжига МС в обычное стекло, проходящий с поглощением весьма большой (~ 15 кДж/моль) теплоты в районе температуры $T = 1000\text{К}$ [6, 7]. При более низких температурах по мере повыше-

ния температуры происходят процессы отжига с выделением существенно меньшего количества тепла. Другим параметром МС, обнаруживающим заметную релаксацию, является плотность системы. Как уже отмечалось выше, релаксация плотности исследовалась ранее, но количественные данные этих работ не анализировались на существование нескольких механизмов релаксации, и прямой анализ данных по плотности не имеет смысла. По этой причине в настоящей работе изучалась зависимость длины образца от времени и температуры с дальнейшим пересчетом полученных данных на плотность.

Измерения температурной зависимости длины образца проводились на dilatометре TMA-40 термоаналитического комплекса «Mettler TA-3000». Измерительная часть dilatометра выполнена из кварцевого стекла. При измерениях коэффициента линейного расширения на таком приборе получаемые значения отличаются от истинных на величину коэффициента линейного расширения кварцевого стекла. В температурном диапазоне $300 - 1250\text{К}$ эта поправка не превышает $1 \cdot 10^{-6} \text{ К}^{-1}$ [8]. В эксперименте измерялся коэффициент линейного расширения облученного быстрыми нейтронами образца кварцевого стекла размером $2 \times 4 \times 10$ мм. Доза облучения $9,3 \cdot 10^{19}$ б.н./ см^2 . Исходный образец, взятый для облучения, представлял собой кварцевое стекло марки КИ с содержанием случайных примесей (Ca, Al, Ba, Sb, Pb, Mn, V, Na, Zn) $1 \cdot 10^{-3} \div 1 \cdot 10^{-1}$ масс.%. Плотность образца до облучения составляла $2,206 \pm 0,005 \text{ г/см}^3$, после облучения $2,268 \pm 0,005 \text{ г/см}^3$. Относительное изменение объема составило $27,3 \pm 4,3 \cdot 10^{-3}$. Плотность образцов кварцевого стекла измеряли стандартным пикнометрическим методом в толуоле [9]. Погрешность при измерении плотности составила $\pm 0,005 \text{ г/см}^3$. В данной работе изучается изменение линейных размеров стекла. В предположении изотропности релаксации образцов и малости изменения объема справедливо равенство $\frac{\Delta V}{V} = 3 \frac{\Delta l}{l}$.

Мы изучали процессы релаксации как в режиме монотонного повышения температуры, так и в специальных режимах с возвратом по температуре (петлеобразный режим).

Скорость нагревания образца была выбрана 1К/мин , чтобы иметь возможность сравнивать получаемые результаты с результатами работы [6]. На рис. 1 графически показана зависимость $\alpha(T)$, полученная из эксперимента. Длина образца увеличивается во всем измеренном интервале температур выше 370К . Примерно

от 450К это увеличение заведомо превосходит обычное тепловое расширение кварцевого стекла, происходит отжиг. Хотя изменение объема, отжиг МС, происходит при любой температуре, превышающей 450К, механизмы этого отжига при различных температурах разные. При малых температурах прокаливания отжигаются радиационные дефекты, при этом выделяется запасенная в дефектах энергия. Скорость изменения объема, как видно из графика 1, линейно нарастает с температурой вплоть до 750К. При более высоких температурах характер зависимости $\alpha(T)$ меняется. Интервал 750—900К переходной. Выше 900К коэффициент теплового расширения превышает $1 \cdot 10^{-5} \text{ К}^{-1}$. При этом, как известно из [7], происходит интенсивное поглощение тепла, связанное с перестройкой вещества на микроуровне. Даже нагревание до 1220К не завершает этот процесс отжига. Из графика видно, что значение α в конце нагревания начинает уменьшаться, но $3 \frac{\Delta l}{l}$ при 1220К составляет 0,019, то есть восстановлено лишь 70% изменения объема. При экстраполяции зависимости $\alpha(T)$ к нулевому значению получены температуры окончания отжига 1520—1600К. Относительное изменение объема при этом составит $24,0 \div 22,8 \cdot 10^{-3}$.

Для определения закономерностей изменения объема при термическом отжиге МС дилатометрические измерения проводились на пяти образцах одного и того же кварцевого стекла с различной дозой облучения. При 1220К для каждого образца измерено значение $3 \frac{\Delta l}{l}$. Образцы в порядке возрастания дозы облучения перечислены в таблице 1. Скорость нагревания задавалась 10К/мин. Аппроксимированные полиномом восьмой степени результаты показаны на рис. 2. Для необлученного стекла (образец 1) отклонения $\alpha(T)$ от нуля, как и ожидалось, не превышает $0,4 \cdot 10^{-6} \text{ К}^{-1}$, что на уровне экспериментального разброса. Образец 2 получил дозу облучения, достаточную для начала образования МС, но данные по плотности свидетельствуют о малой степени превращения обычного стекла в МС. Расширение образца 2 в процессе отжига существенно меньше, чем образцов с большой дозой облучения. Образцы 3, 4 и 5 имеют близкую плотность. По-видимому, дальнейшее увеличение дозы облучения не меняет заметно количество «метамиктной фазы» в кварцевом стекле. Зависимости $\alpha(T)$ для этих трех образцов очень близки. Как и на рис. 1, здесь можно видеть три этапа термического поведения кремнезема: отжиг де-

фектов (до 750К), переход от одного механизма отжига к другому (750—900К), отжиг МС по типу фазового превращения (свыше 900К). По сравнению с результатами измерений со скоростью 1К/мин, при скорости 10К/мин значения $\alpha(T)$ несколько занижены при температурах выше 900К. Не обнаруживается также снижения значений $\alpha(T)$ к концу нагревания, что свидетельствовало бы о завершении процесса отжига. Значения $3 \frac{\Delta l}{l}$ составляют при 1200К 50—60% от значений $\frac{\Delta V_{\max}}{V}$. Как и следовало ожидать, увеличение скорости нагревания смещает процесс отжига в сторону более высоких температур.

Для изучения кинетики процесса отжига МС был выбран немотонный петлеобразный режим изменения температуры с различными скоростями нагревания и охлаждения. Измерения проводились на образце с дозой облучения $9,3 \cdot 10^{19}$ б.н/см². Режим измерения включал нагревание, изотермическую выдержку и последующее охлаждение до комнатной температуры. В каждом последующем цикле измерений нагревание проводилось до температуры, превышающей температуру предыдущего цикла на 100К. Зависимость температуры образца от времени иллюстрируется рис. 3, изменение длины образца при этом — рис. 4. При изотермической выдержке измерялась зависимость длины образца от времени.

Изучение релаксации длины как функции времени при различных фиксированных температурах проводилось в петлеобразном режиме изменения температуры. Образец, предварительно выдержанный при температуре T_n , охлаждался до $T = 300\text{К}$, а затем со скоростью 20К/мин нагревался до температуры $T_{n+1} = T_n + 50\text{К}$. После прекращения нагревания измерялась величина $Y = \frac{dl}{dt}$ — скорость изменения длины l . Анализ зависимости $Y(t)$ показывает, что спектр времен релаксации включает компоненты, релаксирующие с малым временем $\tau_0 \ll 1$ мин, компоненту со временем релаксации $\tau_6 \approx 10$ мин и медленную компоненту, для которой время релаксации $\tau_m > 100$ мин.

Поскольку время установления температурного равновесия в приборе составляет в зависимости от температуры 2—5 минут, на основании наших данных можно лишь заключить, что компонента, релаксирующая с малым временем τ_0 не превосходит нескольких процентов всего изменения длины при отжиге. Для определения

процесса, связанного с временами $t > \tau_0$, данные эксперимента были аппроксимированы зависимостью

$$Y = \frac{dl}{dt} = A e^{-t/\tau_0} + C. \quad (1)$$

За $t=0$ принят момент остановки нагревания, аппроксимировались данные за время $6 \leq t \leq 30$ мин. Отклонение экспериментальных точек от интерполяционной формулы находится в пределах точности измерений. Рассчитанные значения A , τ_0 и C для различных температур приведены на рис. 8, 9 и 10 и в таблице 3. Величина τ_0 слабо зависит от температуры во всем исследованном интервале температур $673 \leq T \leq 1173\text{K}$, в то время как амплитуда скорости отжига быстрой фазы с температурой растет (коэффициент корреляции 0,802). Значение C меняется немонотонно и имеет максимум вблизи $T=1000\text{K}$. Величина изменения длины Δl может быть представлена, в пределах точности эксперимента, в виде суммы быстро и медленно релаксирующих частей, сравнимых по величине: $\Delta l = \Delta l_b + \Delta l_m$.

Важно, что для запуска процесса релаксации необходимо повышение температуры на величину ΔT (в нашем случае $\Delta T=50\text{K}$) по отношению к предыдущему отжигу. При сбросе температуры ниже этого значения T величина $\frac{dl}{dt} = 0$ с точностью наших измерений. Это означает, что процесс релаксации включает стадию инициации. Для каждого интервала температур включается релаксация «своей» доли Δl , которая не отжигается при более низких температурах. Нам представляется правдоподобным предположение, что релаксация длины связана с отжигом элементов структуры (например дефектов), закрепленных на стопорах (ловушках), и что инициация процесса связана со снятием со стопора. Процесс медленной релаксации имеет характерное время τ_m , большее времени нашего измерения, поэтому прямое измерение не дает возможности установить закон релаксации. Косвенно получить представление о законе медленного отжига можно в предположении, что скорость медленной релаксации $\frac{d\Delta l_m}{dt}$ есть степенная функция от полной величины Δl_m , соответствующей нагреву до высокой температуры и полному отжигу. При этом наилучшее описание данных эксперимента дает модельное уравнение

$$\frac{d\Delta l_m}{dt} = -\alpha(\Delta l_m)^2 \quad (2)$$

где $\alpha = \alpha(T)$ зависит от температуры по закону

$$\alpha(T) = \alpha_0 e^{-E_m/T} \quad (3)$$

и величина $E_m \simeq 4,5 \cdot 10^3\text{K}$. Моделирование процесса отжига длины в различных режимах изменения температуры с помощью уравнения (2) приводит к хорошему согласию результатов моделирования и экспериментальных кривых. К примеру, при скорости нагрева 1K/мин при 1223K отожденное изменение объема на 16% превышает ту же величину при скорости нагревания 10K/мин , расчет дает разницу в 20% . Различие в коэффициентах линейного расширения по экспериментальным данным $2 \cdot 10^{-6}\text{K}^{-1}$, расчет: $2 \cdot 10^{-6}\text{K}^{-1}$. Мы сравнили также и экспериментальные данные работы [3] с результатами расчета по закону релаксации (2). Последовательность изменения температуры взята из работы [3], исходные значения и величины констант взяты из нашей работы. Результаты расчетов приведены на рис. 11 вместе с данными работы [3].

При относительно низких температурах ($T < 800\text{K}$) процесс быстрой релаксации преобладает, а при повышении температуры относительно большую роль в тепловых эффектах начинает играть медленная релаксация. Сопоставление наших данных с измерениями тепловых эффектов отжига (см. работу [6]) позволяет предположить, что быстрый отжиг связан с экзотермическим эффектом, преобладающим при относительно низких температурах ($T < 900\text{K}$), а процесс медленной релаксации связан с поглощением тепла. Если это предположение верно, то природа быстрой и медленной релаксаций различна. Процесс быстрой релаксации естественно интерпретировать как отжиг дефектов при неизменной локальной структуре, процесс медленной релаксации — как релаксацию самой структуры. Для выяснения этих вопросов необходимы дальнейшие исследования.

На рис. 5 показано изменение объема образца в процессе отжига. Приведены данные, полученные при непрерывном нагревании со скоростью 10K/мин , при циклическом нагревании со скоростью 10K/мин без учета изотермической выдержки и те же измерения с учетом изотермической выдержки. Для сравнения тут же приведены аналогичные данные из работы [3]. Следует отме-

туть хорошее совпадение данных работы [3] с нашими данными, соответствующими изотермическому отжигу, хотя время отжига заметно различалось: 5 часов и 1,5 часа. Отжиг при непрерывном нагревании со скоростью 10К/мин демонстрирует значительное отставание.

На рис. 6 показана зависимость $\alpha(T)$, измеренная в циклическом режиме. Отжиг МС и связанное с этим изменение плотности образца необратимы. При повторном прохождении одной и той же температуры значение α близко к значению для необлученного кварцевого стекла. После нагревания до температуры, превышающей температуру предыдущего цикла, значение $\alpha(T)$ начинает резко возрастать, стремясь достичь величины, полученной в эксперименте с непрерывным нагреванием от комнатной температуры до 1220К. Именно существование такого разделения дефектов по температурам отжига позволяет измерить удельные теплоты отжига дефектов. При температурах от комнатной до примерно 900К с выделением тепла отжигаются дефекты, связанные с оптическими свойствами, выше по температуре отжигаются дефекты структурного характера с большим поглощением тепла. И те и другие при отжиге изменяют плотность в одну сторону, тепловой же эффект их противоположен по знаку.

Тепловые эффекты отжига МС изучались на ДСК-30 термоаналитического комплекса «Mettler TA-3000». Образцы в калориметре нагревались с той же скоростью и до тех же температур, что и на dilatометре в петлеобразном режиме. При этом было обнаружено, что измеряемая в режиме сканирования теплоемкость неотожженного стекла оказывается меньше теплоемкости того же самого образца, но уже отожденного при 870К, т. е. $C'_p - C_p = \Delta C < 0$, где C'_p — теплоемкость отожденного облученного стекла, C_p — теплоемкость неотожженного стекла. Различие теплоемкостей C'_p и C_p объясняется, с учетом особенностей измерения теплоемкости в сканирующем режиме, экзотермичностью процесса релаксации при отжиге в температурном интервале до 870К (температурный предел работы ДСК-30). На рис. 7 показаны зависимости $\Delta C(T)$. Характер зависимости значений α от температуры сходен с $\Delta C(T)$. Если обозначить через H' теплоту отжига облученного стекла, H — энтальпию отоженного стекла, то при измерении теплоемкости в режиме сканирования:

$$C_p = \frac{d(H+H')}{dT} = C_p + \Delta C. \quad (4)$$

Изменения размера образца при отжиге:

$$\alpha = \frac{1}{l_0} \frac{dl}{dT}; \quad 3\alpha = \frac{1}{V_0} \frac{dV}{dT}. \quad (5)$$

Структура МС неизвестна, и для количественной характеристики ее используются данные по плотности. Определим удельную (на единицу изменения объема) теплоту образования отжигаемой в наших опытах «метамиктной фазы»:

$$\frac{dH'}{dV} = \frac{\Delta C}{3\alpha V_0} f(T). \quad (6)$$

С другой стороны, предположив зависимость теплоты отжига облученного стекла от объема и температуры в самом простом виде:

$$\Delta H' = \frac{\Delta l}{l} f(T); \quad f(T) = a + bT + cT^2, \quad (7)$$

можно определить функцию численно:

$$\frac{\Delta C}{\alpha} = f(T) + \frac{\Delta l}{l\alpha} f'(T). \quad (8)$$

В результате обработки экспериментальных данных методом наименьших квадратов получены значения коэффициентов функции $f(T)$ для интервала температур 570—870К и на основании данных об изменении длины при петлеобразном отжиге рассчитана теплота отжига при 673К: 0,7 кДж/моль.

Для получения экспериментальных данных по теплотам отжига МС при различных температурах использована техника растворения кремнезема в расплаве $2\text{PbO} \cdot \text{V}_2\text{O}_5$ при температуре 973К [10]. Разницы в теплотах облученного и необлученного стекол приведены в таблице 2. Данные по теплотам растворения согласуются с результатами работы в пределах 20% и коррелируют с дозой облучения. Разница между теплотой растворения образца 4, отоженного при 673К, и неотожженного равна 0,8 кДж/моль и соответствует теплоте отжига при этой температуре. Видно хорошее согласие с расчетным значением (0,7 кДж/моль).

ВЫВОДЫ

1. Отжиг метамиктного состояния кремнезема, полученного в результате нейтронного облучения, происходит в широком температурном интервале от 300К до, по крайней мере, 1300К. Во всем этом интервале температур происходит плавное увеличение объема вследствие отжига. Никаких скачкообразных изменений объема, которые можно было бы связать с фазовым превращением, не обнаружено.

2. В процессе нагревания при монотонном увеличении объема облученного нейтронами кремнезема существуют, по крайней мере, два различных типа отжига. Один тип — экзотермический отжиг, происходящий в интервале температур от комнатной до 900К. Второй — эндотермический отжиг, происходящий в интервале температур от 900 до 1220К. Оба процесса происходят в широком интервале температур, носят кинетический характер и не имеют какой-то выделенной температуры, которую можно было бы назвать температурой фазового перехода. Эндотермический процесс отжига связан с большим изменением объема, чем экзотермический.

3. Механизм релаксации плотности при экзотермическом отжиге можно объяснить дефектами структуры (вакансии, атомы внедрения, дислокации), присутствующими в среде в большом количестве.

Процессы, происходящие при эндотермическом отжиге, требуют, с нашей точки зрения, дальнейших исследований. Одно из возможных объяснений состоит в том, что эндотермический отжиг есть по существу процесс изменения локальной структуры, т. е. полиморфное превращение [1]. Размытость такого процесса по температуре может быть следствием неоднородности системы на длинах порядка нескольких десятков межатомных длин. Имеет смысл термин метамиктное состояние, используемый до сих пор для обозначения облученного нейтронами кремнезема, относить только к состоянию кремнезема, отжигающемуся при высоких температурах с поглощением тепла. При температурах ниже 900К с выделением тепла отжигаются радиационные дефекты метамиктного состояния кремнезема.

Авторы выражают благодарность Л.М. Ланде за предоставление образцов и полезные обсуждения, Е.С. Золотовой за измерения плотности и Л.П. Огородовой за измерения теплот растворения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Бреховских С.М., Викторова Ю.Н., Ланда Л.М. Радиационные эффекты в стеклах. — М.: Энергоиздат, 1982, 184 с.
2. Бюргановская Г.В., Варгин В.В., Леко Н.А., Орлов Н.Ф. Действие излучений на неорганические стекла. — М.: Атомиздат, 1968, 242 с.
3. Primak W., Szymanski H. and Keiffer D. J. Appl. Phys., 1961, v.32, N 4, p.660.
4. Березовский Г.А., Давронов О., Ланда Л.М. Термодинамические свойства аморфных фаз диоксида кремния в интервале 6—340К. — Препринт ИНХ СО АН СССР 87-6. Новосибирск, 1987.
5. Паташинский А.З. О фазовых переходах в телах с большой плотностью дефектов. — Препринт ИЯФ СО АН СССР 87-82. Новосибирск, 1987.
6. Ланда Л.М., Большаков В.В., Заболотский Л.В., Ключников В.А. Журн. техн. физики, 1985, т.55, № 5, с.979.
7. Ланда Л.М., Паташинский А.З. Об аморфных фазах кремнезема с различной локальной структурой. — Препринт ИЯФ СО АН СССР 86-70. Новосибирск, 1986.
8. Новикова С.И. Тепловое расширение твердых тел. М.: Наука, 1974, 265 с.
9. Воскресенский П.И. Техника лабораторных работ. М.: Химия, 1973, 168 с.
10. Киселева И.А., Огородова Л.П. Геохимия, 1983, № 12, с.1745.

Таблица 1

№	Доза, б.н./см ²	Плотность, г/см ³	$\frac{\Delta V_{\max}}{V}$	$3 \frac{\Delta l}{l}$
1	—	2,206	0,000	0,000
2	$5 \cdot 10^{17}$	2,226	0,009	0,006
3	$5 \cdot 10^{18}$	2,265	0,026	0,013
4	$9,3 \cdot 10^{19}$	2,268	0,027	0,014
5	$2,2 \cdot 10^{20}$	2,265	0,026	0,015

Таблица 2

№	Доза, б.н./см ²	Температура отжига, К	$Q - Q_0$, кДж/моль
1	—	300	0
2	$5 \cdot 10^{17}$	300	2,5
3	$5 \cdot 10^{18}$	300	8,6
4	$8,3 \cdot 10^{19}$	300 673 1273	10,4 11,2 -0,5
5	$2,2 \cdot 10^{20}$	300	11,1

Таблица 3

Характерное время отжига «быстрой» фазы τ_0 , амплитуда отжига «быстрой» фазы A и постоянная составляющая скорости отжига C .

$T, ^\circ\text{C}$	τ_0 , мин	$A, 10^{-3}$ мкм/с	$C, 10^{-3}$ мкм/с
400	11,1	2,03	0,26
450	8,9	2,66	0,41
500	8,2	3,99	0,63
550	9,5	4,80	0,78
600	8,9	6,27	0,91
650	9,5	5,98	0,97
700	10,2	6,38	1,04
750	10,3	6,82	0,98
800	10,4	7,47	0,99
850	9,1	7,88	1,18
900	12,1	6,26	0,63

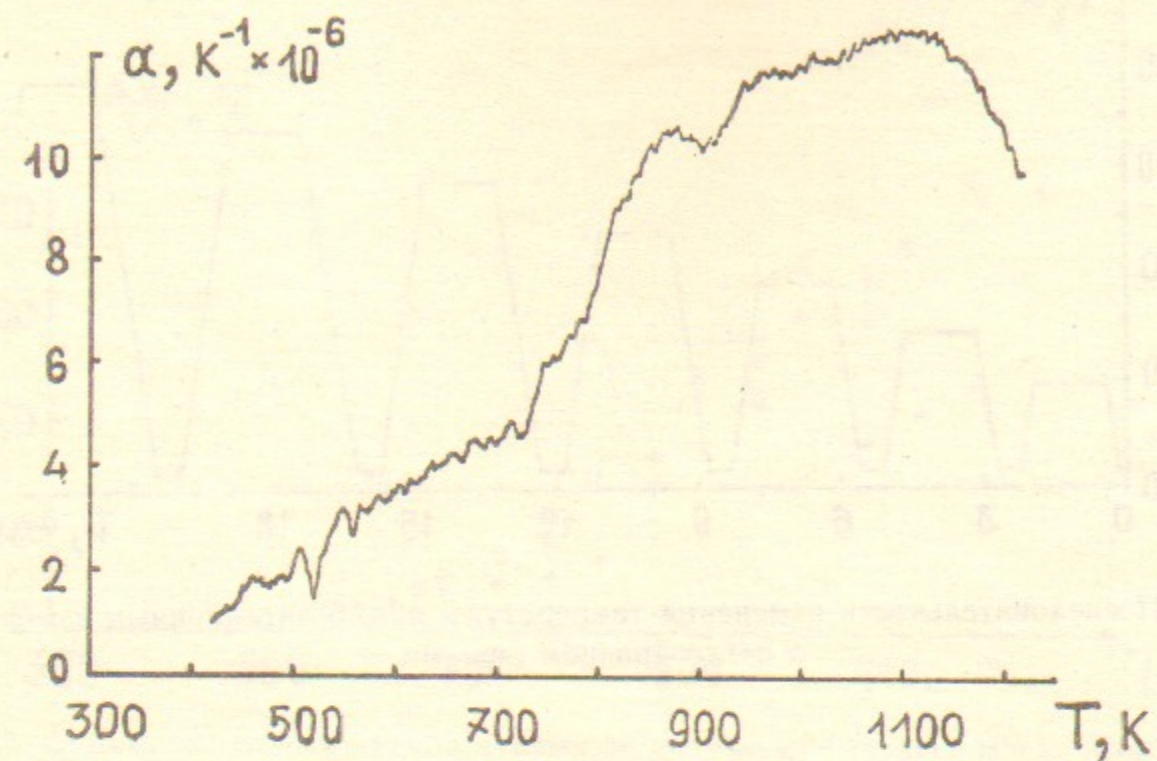


Рис. 1. Коэффициент линейного расширения аморфного кремнезема с дозой облучения $9,3 \cdot 10^{19}$ б.н./см². Скорость нагревания 1К/мин, длина образца 10,21 мм.

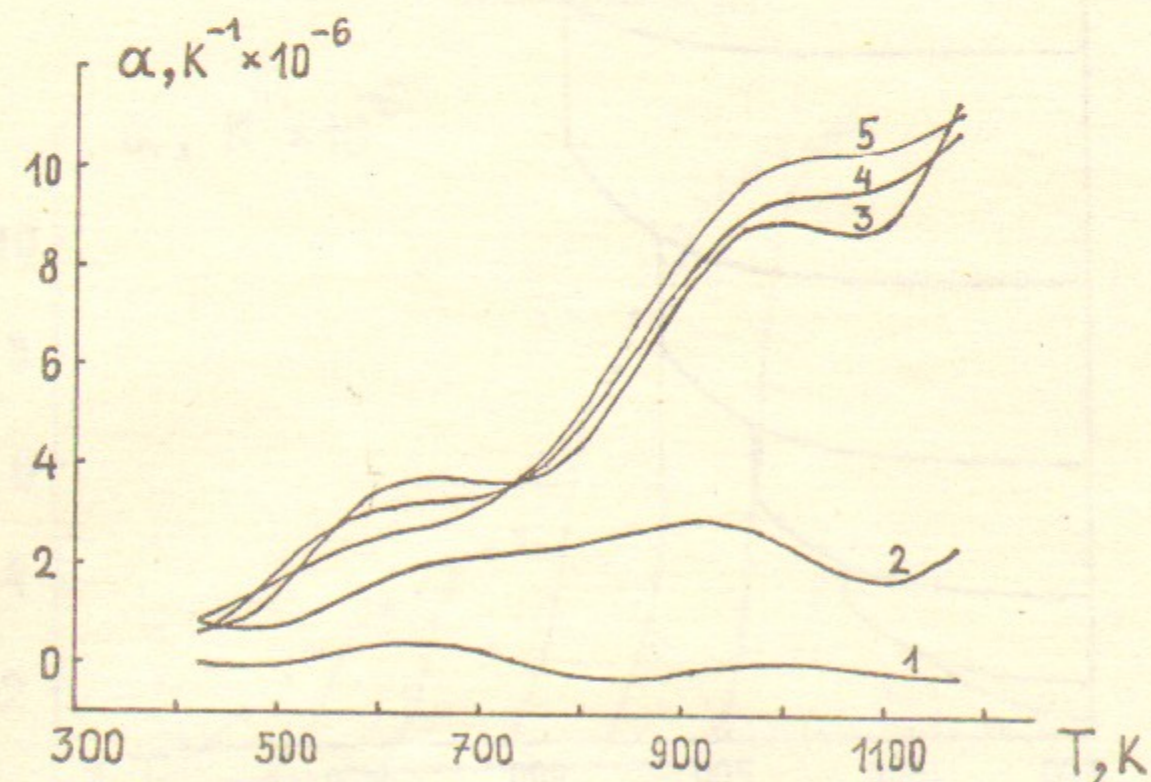


Рис. 2. Коэффициент линейного расширения аморфного кремнезема при различных дозах облучения:

Без облучения (1); $5 \cdot 10^{17}$ б.н./см² (2); $5 \cdot 10^{18}$ б.н./см² (3); $9,3 \cdot 10^{19}$ б.н./см² (4); $2,2 \cdot 10^{20}$ б.н./см² (5). Скорость нагревания 10К/мин.

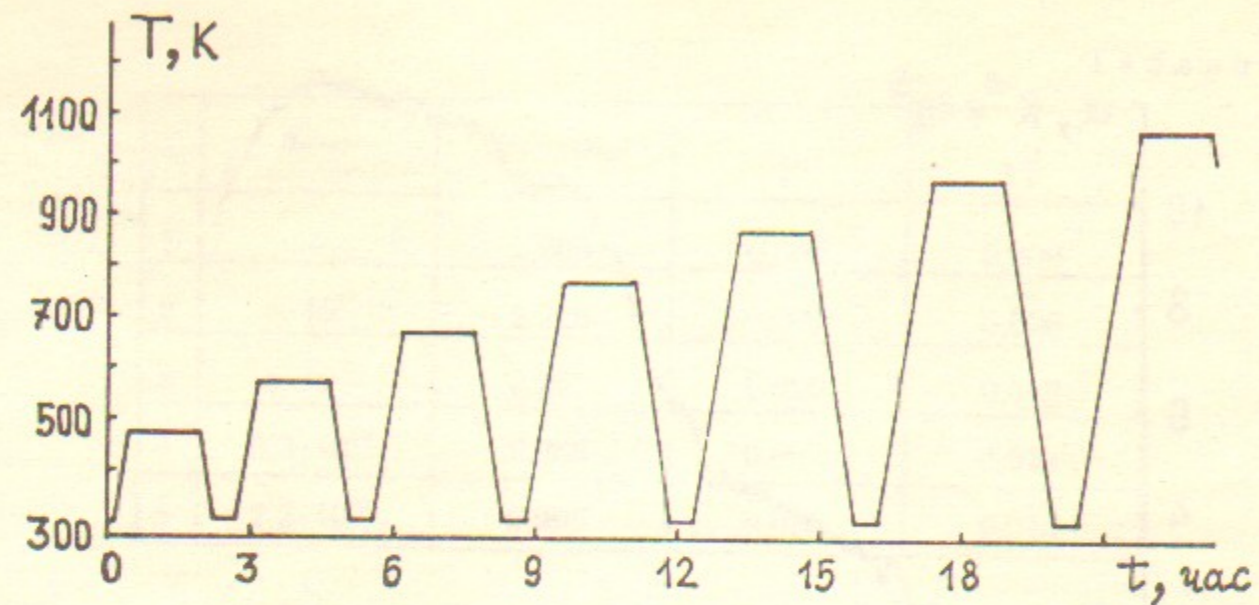


Рис. 3. Последовательность изменений температуры при дилатационных измерениях в петлеобразном режиме.

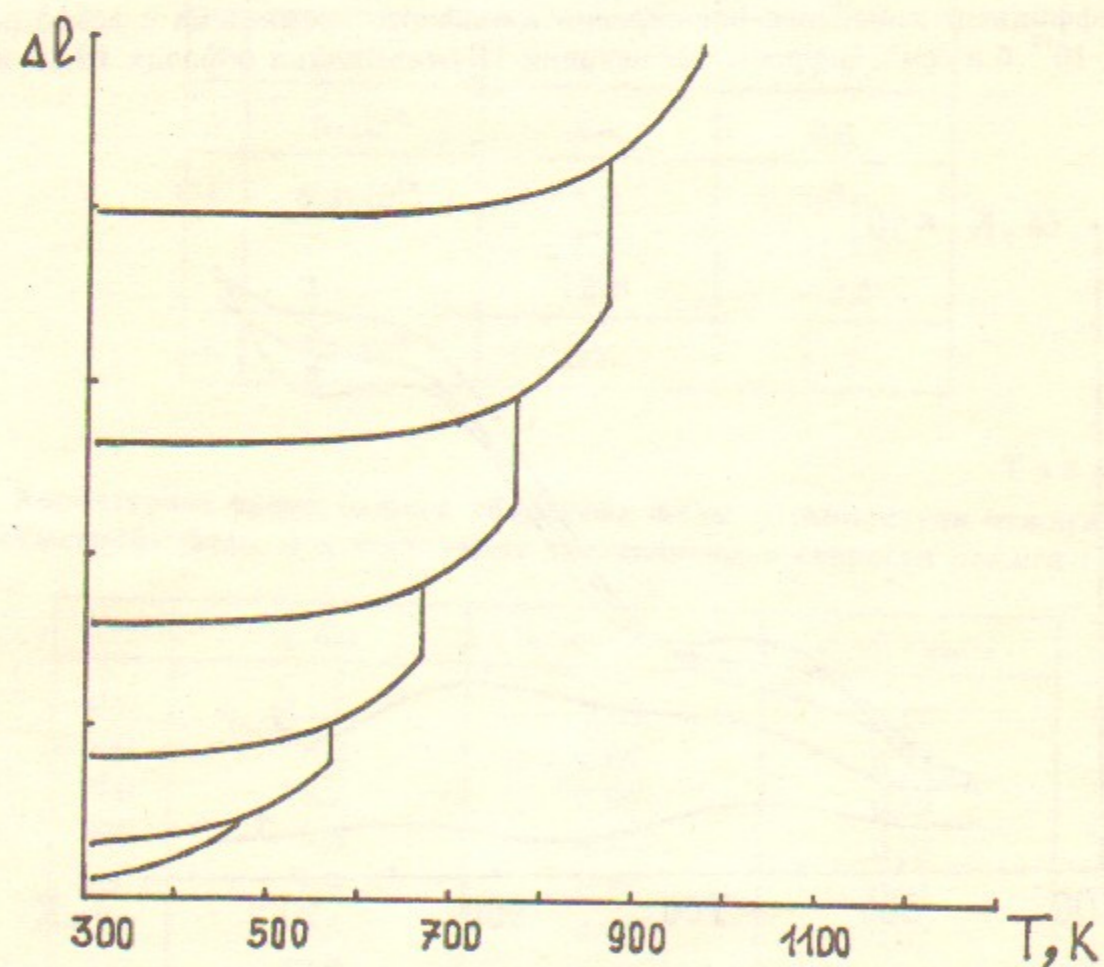


Рис. 4. Последовательность изменений длины при измерениях в петлеобразном режиме.

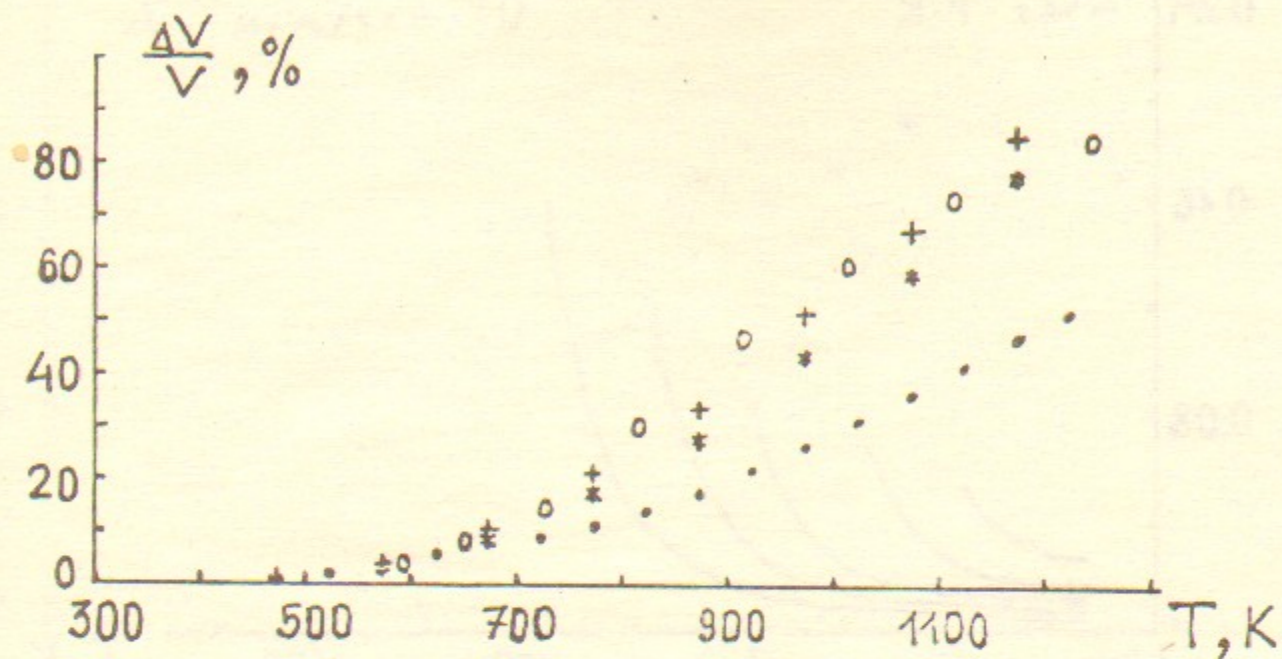


Рис. 5. Суммарное относительное изменение объема при отжиге метамиктного кремнезема:

• — непрерывное нагревание со скоростью 10К/мин; * — к моменту начала изотермической выдержки при петлеобразном режиме нагревания; + — к моменту окончания изотермической выдержки при петлеобразном режиме нагревания; ○ — данные работы [9].

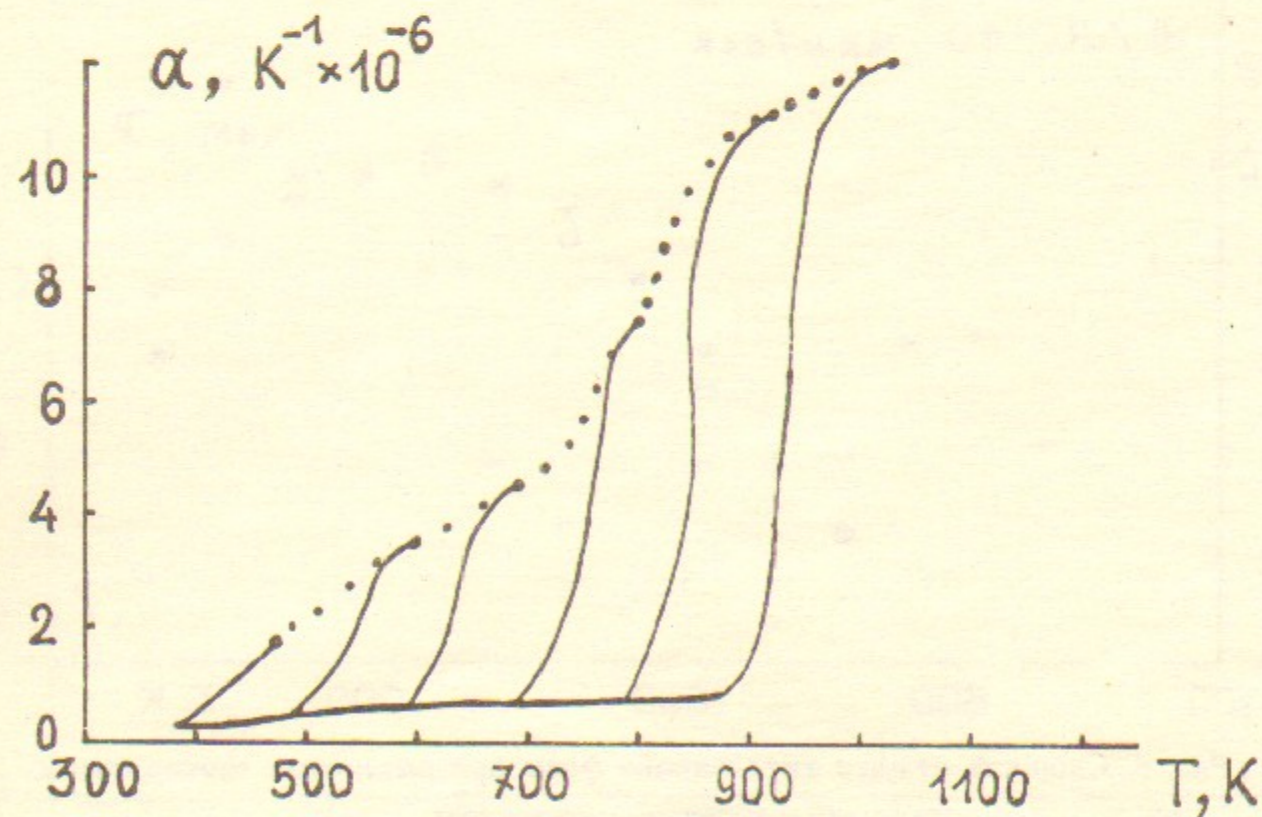


Рис. 6. Коэффициент расширения аморфного кремнезема с дозой облучения $9,3 \cdot 10^{19}$ б.н./см². Петлеобразный режим, скорость нагревания 10К/мин. Пунктиром показан коэффициент линейного расширения при непрерывном нагревании со скоростью 10К/мин.

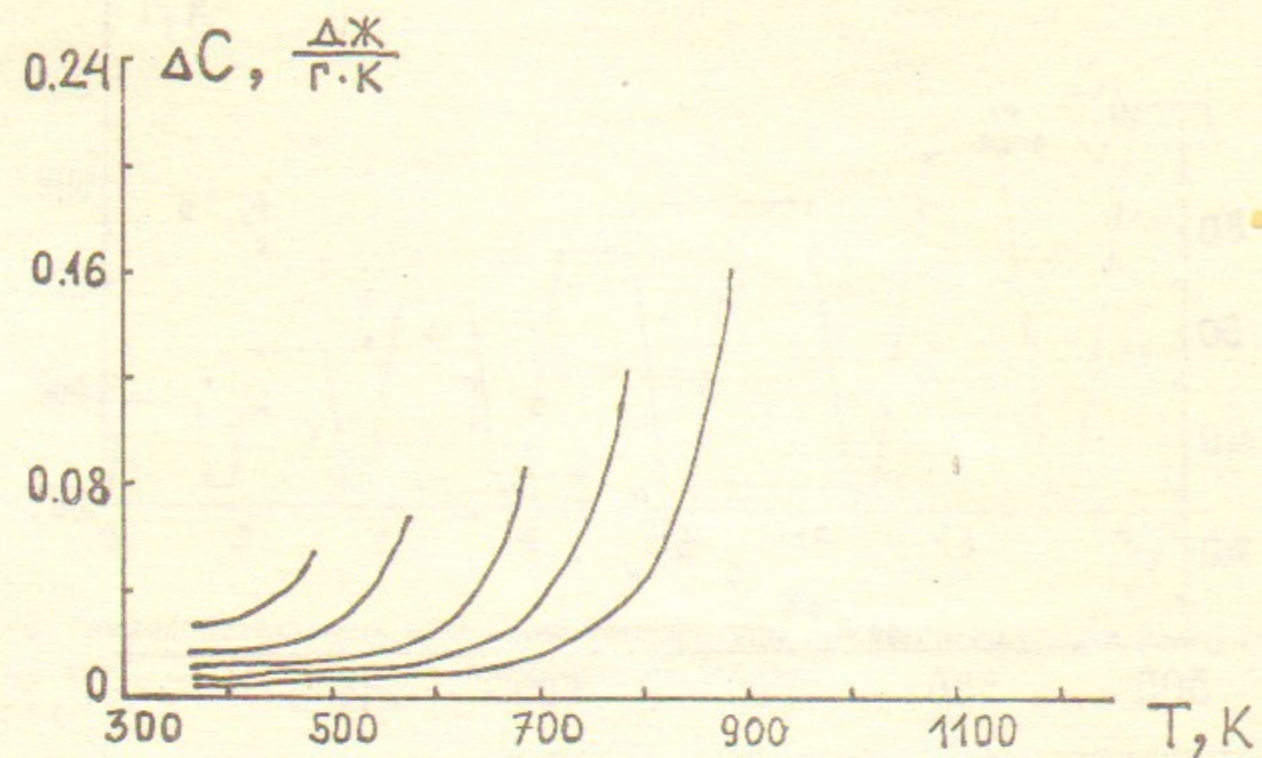


Рис. 7. Экзотермический вклад в теплоемкость за счет отжига дефектов. Аморфный кремнезем с дозой облучения $9,3 \cdot 10^{19}$ б.н./см². Петлеобразный режим, скорость нагревания 10К/мин.

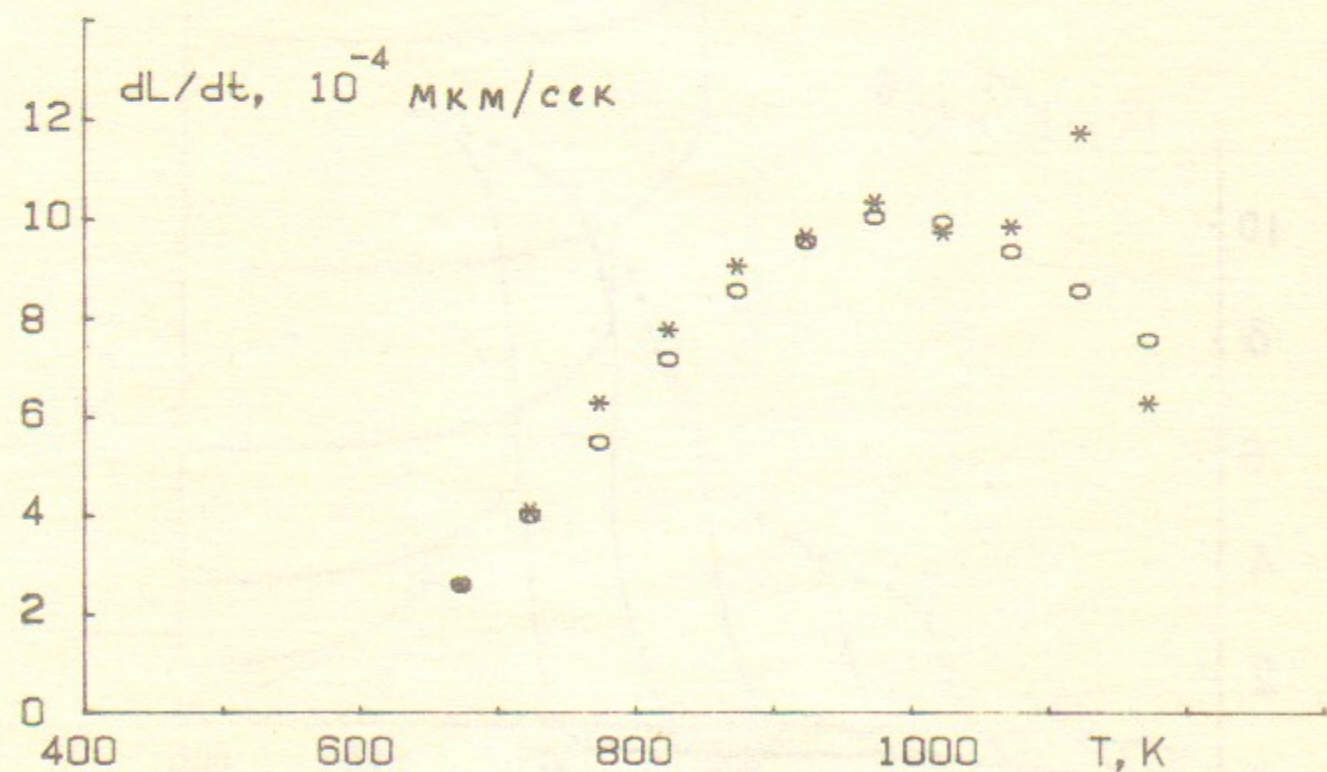


Рис. 8. Скорость отжига «медленной» фазы при различных температурах.
○ — расчет; * — эксперимент.

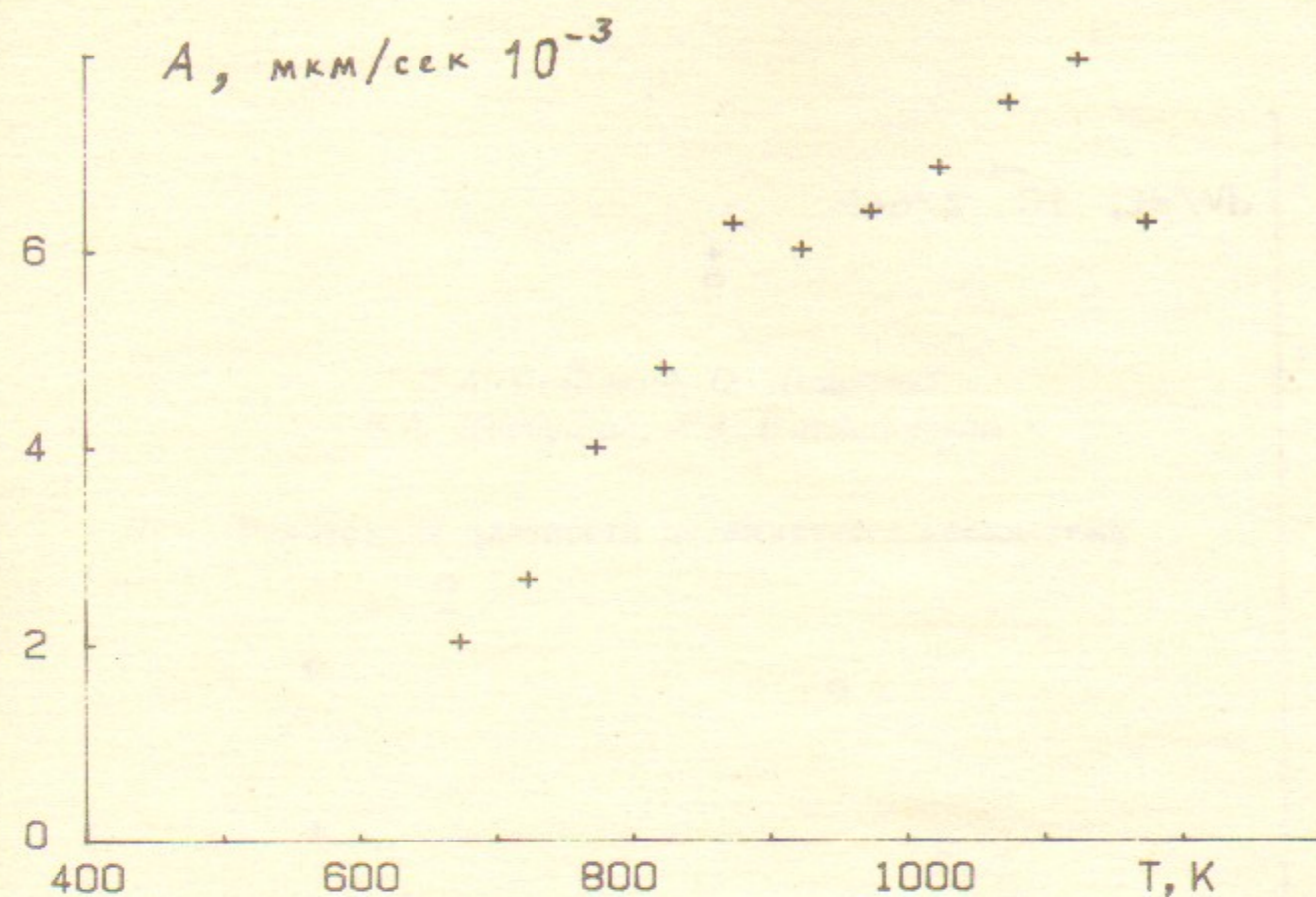


Рис. 9. Амплитуда отжига «быстрой» фазы.

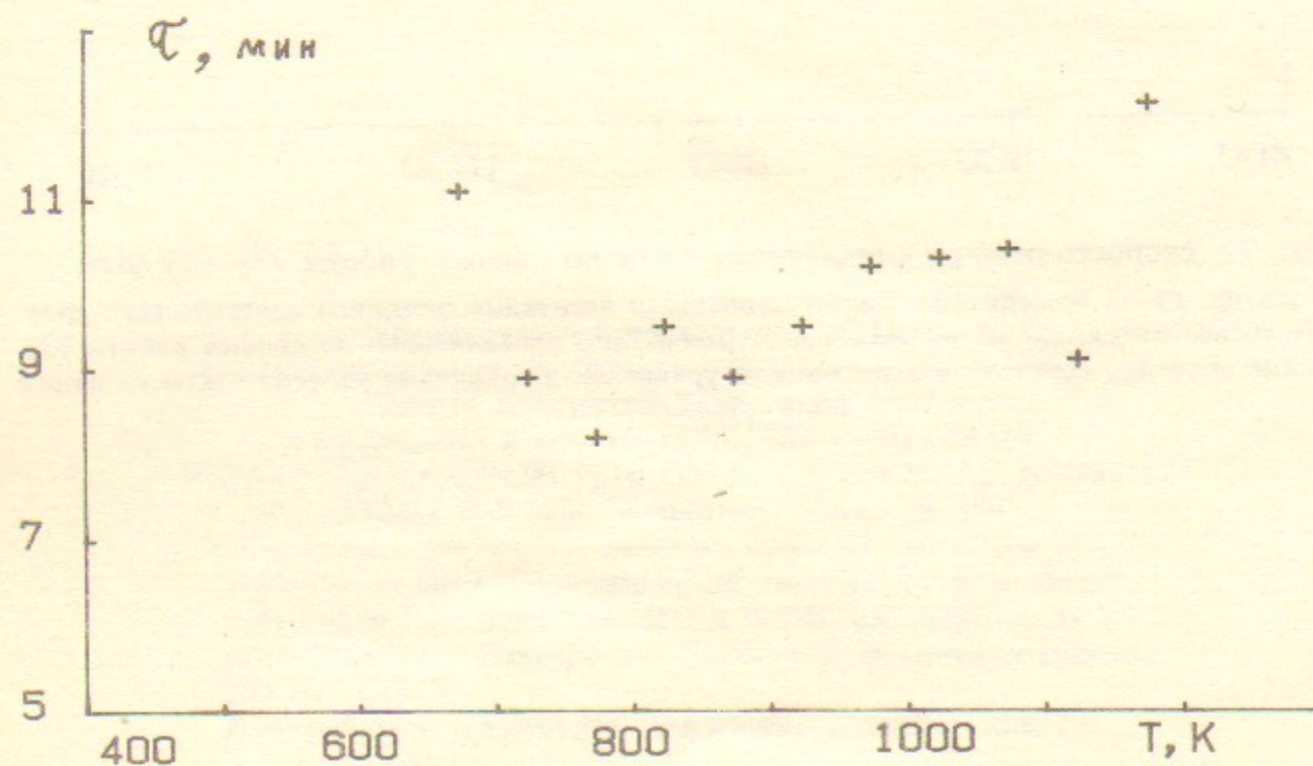


Рис. 10. Характерное время отжига «быстрой» фазы.

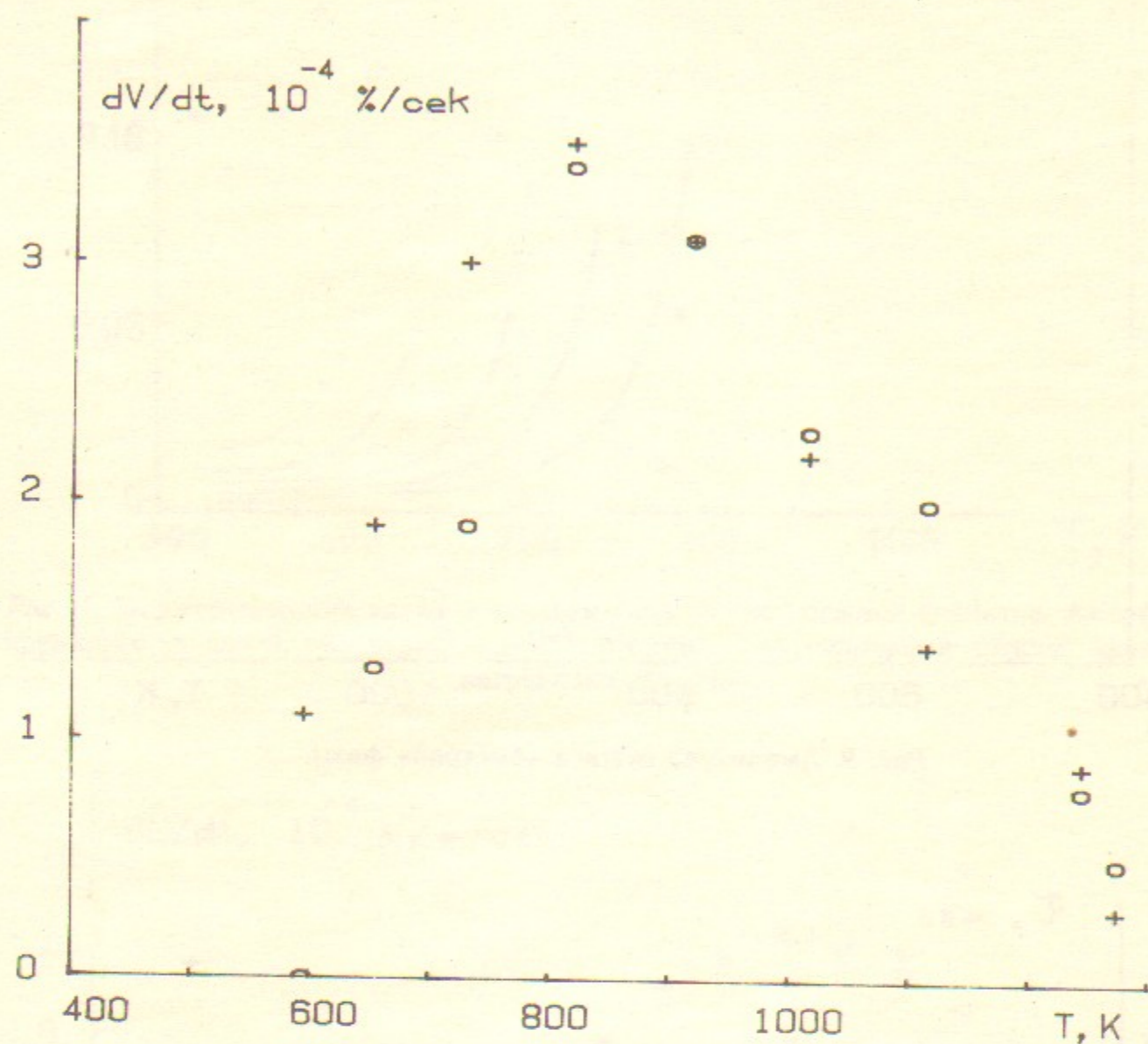


Рис. 11. скорость отжига «медленной» фазы по данным работы [3] ($\Delta V/\Delta t$):
 + — расчет, o — эксперимент. Расчет проводился численным решением кинетического уравнения с последовательностью нагрева и изотермического прокаливания по данным работы [3]. Численные значения констант в кинетическом уравнении и граничные условия взяты из нашей работы.

И.А. Белицкий, О. Давронов,
 В.А. Дребуцак, А.З. Паташинский

Релаксация плотности метамиктного кремнезема

Ответственный за выпуск С.Г.Попов

Работа поступила 16 октября 1987 г.
 Подписано в печать 12.11.1987 г. МН 08449
 Формат бумаги 60×90 1/16 Объем 1,5 печ.л., 1,2 уч.-изд.л.
 Тираж 290 экз. Бесплатно. Заказ № 156

Набрано в автоматизированной системе на базе фото-
 наборного автомата ФА1000 и ЭВМ «Электроника» и
 отпечатано на ротапринтере Института ядерной физики
 СО АН СССР,
 Новосибирск, 630090, пр. академика Лаврентьева, 11.