

К. т. н. Н. М. ВАКИВ, к. ф.-м. н. Р. Я. ГОЛОВЧАК,  
к. ф.-м. н. А. П. КОВАЛЬСКИЙ, д. ф.-м. н. О. И. ШПОТЮК

Украина, г. Львов, Научно-производственное предприятие «Карат»  
E-mail: shpotyuk@novas.lviv.ua

Дата поступления в редакцию  
06.09 2004 г.

Оппонент д. ф.-м. н. В. М. ЦМОЦЬ  
(Дрогобычский гос. пед. ун-т)

## УСЛОВИЯ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ СТЕКЛООБРАЗНЫХ ХАЛЬКОГЕНИДНЫХ СПЛАВОВ В ДОЗИМЕТРИИ ВЫСОКОЭНЕРГЕТИЧНЫХ $\gamma$ -КВАНТОВ

*Реализация дозиметрических систем на основе исследованных сред требует учета послерадиационной релаксации значений контролируемого параметра и его зависимости от нагрева.*

Поиск дешевых и эффективных сред для приборов контроля и регистрации высокоэнергетичных ионизирующих излучений уже длительное время является одной из актуальных задач радиационной физики. Как вариант ее решения может рассматриваться использование для этих целей различных стеклообразных сплавов.

Кроме оксидных стекол, традиционно применяемых в промышленной дозиметрии [1, 2], интерес вызывают и бескислородные ковалентно-увязанные халькогенидные сплавы (ХС), представляющие собой соединения атомов халькогена (серы, селена или теллура) с элементами IV и V групп Периодической таблицы. Их преимуществом, несомненно, является более высокий порог измеряемых доз, составляющий в случае стеклообразного трисульфида мышьяка  $10^7$  Гй [3, 4]. Успехи в области исследования влияния высокоэнергетичных излучений на структуру и физические свойства многокомпонентных ХС позволяют расширить внутри данного класса материалов поиск новых перспективных радиационно-чувствительных сред для промышленной дозиметрии [5, 6].

Среди многих исследованных авторами ХС тройных систем As—Sb—S, As—Bi—Se, Ge—Sb—S и Ge—As—S [5, 7, 8] именно нестехиометрический разрез последней  $(As_2S_3)_x(Ge_2S_3)_{1-x}$  обладает требуемым сочетанием технологических и дозиметрических свойств, необходимых для возможного промышленного внедрения. Однако имеются определенные ограничения, связанные с ощутимой температурной чувствительностью измеряемых физических параметров и наличием их послерадиационной релаксации [9]. Эти особенности и являются предметом анализа в настоящей работе.

Влияние радиационного поля высокоэнергетичных  $\gamma$ -квантов источника  $^{60}Co$  (средняя энергия  $E=1,25$  МэВ, мощность дозы  $P=1 \dots 2$  Гй/с) изучалось в диапазоне доз от 0,5 до 4,4 МГй для ХС разреза  $(As_2S_3)_x(Ge_2S_3)_{1-x}$  с  $x=0,1, 0,2, 0,3, 0,4, 0,5, 0,6, 0,8$ . Каждому из составов соответствовало определенное значение среднего координационного числа  $Z$  (2,76, 2,72, 2,67, 2,64,

2,60, 2,56, 2,48), равного среднему количеству ковалентных химических связей в расчете на один атом формульной единицы стекла. (Следует отметить, что  $Z$  является общепринятой переменной при изучении концентрационных зависимостей физических свойств ХС [5].)

В качестве параметра, измеряемого до и после облучения, выбрано максимальное значение относительного изменения коэффициента оптического поглощения  $(\Delta\alpha/\alpha)_{\max}=\chi$ , полученное из зависимости  $\Delta\alpha/\alpha$  от  $Z$ . С целью изучения послерадиационной релаксации параметра  $\chi$  его значения регистрировались через 2 ( $\chi_{\Sigma}^{90}$ ) и 90 ( $\chi_{\text{ст}}^{90}$ ) суток после завершения радиационной обработки. Дозиметрическая эффективность ХС определялась значением чувствительности  $S$ , получаемой из формулы

$$\chi = S \lg \Phi + A, \quad (1)$$

где  $S = (\chi_2 - \chi_1) / \lg(\Phi_2 / \Phi_1)$ ;  
 $\chi_2, \chi_1$  — измеряемые физические величины при дозах облучения  $\Phi_2$  и  $\Phi_1$ , соответственно;  
 $A$  — некоторая постоянная.

Проведенные исследования показали (табл. 1), что при указанной выше мощности дозы только в диапазоне доз от 0,5 (порог чувствительности для данного разреза ХС) до 1 МГй практически отсутствует влияние температурного нагрева образца на дозовые зависимости измеряемого параметра  $\chi$ . Следовательно, именно в этом диапазоне возможно адекватное изучение дозиметрических характеристик ХС, а также механизмов послерадиационной релаксации контролируемых физических величин (в нашем случае  $\chi$ ).

Как видно из таблицы, через двое суток после облучения наибольшей чувствительностью  $S_{\Sigma}$  к  $\gamma$ -облучению

Таблица 1

*Дозиметрические характеристики ХС разреза  $(As_2S_3)_x(Ge_2S_3)_{1-x}$  рассчитанные через 2 ( $\chi_{\Sigma}^{90}, S_{\Sigma}$ ) и 90 ( $\chi_{\text{ст}}^{90}, S_{\text{ст}}$ ) суток после  $\gamma$ -облучения дозой 1,0 МГй*

Z	x	$\chi_{\Sigma}^{90}$	$S_{\Sigma}$	$\chi_{\text{ст}}^{90}$	$S_{\text{ст}}$	$(S_{\Sigma} - S_{\text{ст}}) / S_{\Sigma}$
2,76	0,1	0,52	1,73	0,17	0,56	0,68
2,72	0,2	0,61	2,03	0,27	0,90	0,56
2,67	0,3	0,63	2,10	0,28	0,93	0,56
2,64	0,4	0,42	1,40	0,25	0,83	0,41
2,60	0,5	0,38	1,26	0,215	0,72	0,43
2,56	0,6	0,34	1,13	0,18	0,60	0,47
2,48	0,8	0,27	0,90	0,10	0,33	0,63

чению обладают ХС, характеризующиеся значением  $Z=2,67$ . Известно [5, 6], что при этом значении среднего координационного числа в ХС в наибольшей степени проявляются структурные изменения, индуцированные внешними воздействиями, в том числе и полем высокоэнергетических  $\gamma$ -квантов. Данная особенность объясняется максимальной структурной разупорядоченностью матрицы ХС по сравнению с другими составами выбранного нестехиометрического разреза, о чем свидетельствует наблюдаемый в этой точке максимум молярного объема [5]. В то же время природа такой композиционной особенности уже на протяжении более 10 лет является предметом интенсивной научной дискуссии, где одна сторона стоит на позициях существования при данном соотношении химических компонент топологического фазового перехода от двухмерной к трехмерной структурной сетке стекла [10], а другая склоняется к возможности образования наноразмерных областей фазового расслоения [11].

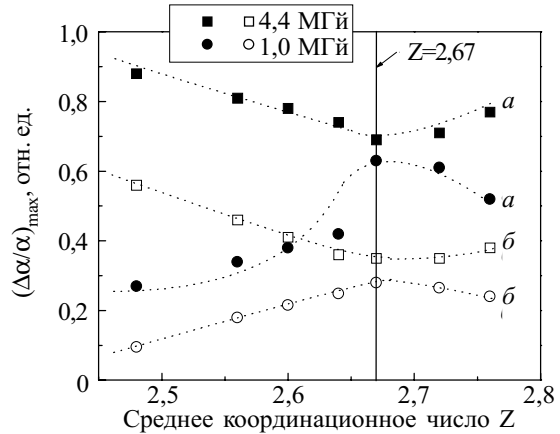
Вследствие послерадиационной релаксации значение параметра  $\chi$ , рассчитанное через 90 суток после облучения ( $\chi_{ст}^{90}$ ), существенно уменьшается. Но и в этом случае наиболее чувствительным остается ХС с  $Z=2,67$ , т. к. относительное изменение чувствительности  $(S_{\Sigma}-S_{ст})/S_{\Sigma}$  максимально для крайних составов, обогащенных As и Ge. Естественно, что уменьшение контролируемого параметра со временем после окончания радиационного воздействия требует дополнительного учета этой зависимости  $\chi(t)$  в процессе регистрации поглощенной дозы, однако дозиметрические характеристики ХС остаются вполне удовлетворительными для практической реализации такой регистрирующей системы впоследствии.

Таблица 2

Значения чувствительности ХС разреза  $(As_2S_3)_x(Ge_2S_3)_{1-x}$  к высокоэнергетичному  $\gamma$ -облучению, рассчитанные через 2 ( $S_{\Sigma}$ ) и 90 ( $S_{ст}$ ) суток после  $\gamma$ -облучения различными дозами

Z	x	$\Phi=0,5...1,0$ МГй, $T<320...330$ К		$\Phi=1,0...4,4$ МГй, $T\leq 370...380$ К		$(S_{\Sigma}-S_{ст}')/S_{\Sigma}$	$(S_{ст}-S_{ст}')/S_{ст}$
		$S_{\Sigma}$	$S_{ст}$	$S_{\Sigma}'$	$S_{ст}'$		
2,76	0,1	1,73	0,56	0,39	0,20	0,77	0,64
2,72	0,2	2,03	0,90	0,16	0,16	0,92	0,82
2,67	0,3	2,10	0,93	0,09	0,11	0,96	0,88
2,64	0,4	1,40	0,83	0,50	0,17	0,64	0,80
2,60	0,5	1,26	0,72	0,63	0,30	0,50	0,58
2,56	0,6	1,13	0,60	0,73	0,44	0,35	0,27
2,48	0,8	0,90	0,33	0,95	0,73	-0,06	-0,63

Более сложным является учет совместного воздействия излучения и температуры нагрева образца ХС в канале источника при высоких поглощенных дозах (табл. 2). В результате такого влияния максимальной чувствительностью обладают дозиметрические системы на основе мышьякообогащенных ХС, структура которых практически не изменяется под действием температурного фактора. В то же время в ХС с  $Z=2,67$  наблюдается температурное стирание радиационно-индуцированных изменений параметра  $\chi$ , вследствие чего такие стекла становятся менее чувствительными к влиянию поля высокоэнергетических  $\gamma$ -квантов по сравнению с ХС других составов данного разреза (см. рисунок). Данный факт легко объясняется максимальным уменьшением (с увели-



Композиционные зависимости относительного изменения коэффициента оптического поглощения  $(\Delta\alpha/\alpha)_{max}$ , зарегистрированные через 2 (а) и 90 (б) суток после завершения процесса радиационной обработки  $\gamma$ -квантами дозами 1,0 и 4,4 МГй, для ХС разреза  $(As_2S_3)_x(Ge_2S_3)_{1-x}$

чением дозы для названного состава) относительно изменения чувствительности как суммарного эффекта  $(S_{\Sigma}-S_{ст}')/S_{\Sigma}$ , так и его статической составляющей  $(S_{ст}-S_{ст}')/S_{ст}$ .

Таким образом, ХС нестехиометрического разреза  $(As_2S_3)_x(Ge_2S_3)_{1-x}$  могут быть эффективно использованы для контроля и регистрации больших поглощенных доз  $\gamma$ -излучения. При этом практическая реализация дозиметрических систем на основе этих сред требует учета как послерадиационной релаксации значений контролируемого параметра, так и его зависимости от нагрева в канале источника излучения.

ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ

1. Пикаев А. К. Современная радиационная химия. Твердое тело и полимеры. Прикладные аспекты.— М.: Наука, 1987.
2. Франк М., Штольц Б. Твердотельная дозиметрия ионизирующих излучений.— М.: Атомиздат, 1973.
3. Shpotyuk O. I. Amorphous chalcogenide semiconductors for dosimetry of high-energy ionizing irradiation // Radiat. Phys. Chem.— 1995.— Vol. 46, N 4—6.— P. 1279—1282.
4. Shpotyuk O. I., Balitska V. O., Vakiv M. M., Shpotyuk L. I. Sensors of high-energy radiation based on amorphous chalcogenides // Sensor Actuat. A.— 1998.— Vol. 68.— P. 356—358.
5. Shpotyuk O., Kovalskiy A. Compositional trends in the radiation-optical properties of chalcogenide glasses // J. Optoelectron. Adv. Mater.— 2002.— Vol. 4, N 3.— P. 751—762.
6. Kovalskiy A. Peculiarities of  $\gamma$ -induced optical effects in ternary systems of amorphous chalcogenide semiconductors // Ibid.— 2001.— Vol. 3, N 2.— P. 323—327.
7. Ковальський А. Вплив високоенергетичного  $\gamma$ -випромінювання на оптичні властивості халькогенідних стекол системи As—Sb—S // Вісн. НУ “Львівська політехніка”.— 2002.— № 455: Електроніка.— С. 28—33.
8. Ковальський А. П. Вплив гама-опромінювання на спектри оптичного пропускання халькогенідних стекол  $As_2Se_3Bi_x$  // Вісн. Львівського університету. Сер. Фіз.— 1989.— Вип. 22: Фізичне матеріалознавство.— С. 85—88.
9. Вакив Н. М., Балицкая В. А., Шпотюк О. И., Буткевич Б. Деградиационные превращения в топологических разупорядоченных твердых телах: 1. Математические модели кинетики.— Технология и конструирование в электронной аппаратуре.— 2003.— № 4.— С. 61—64.
10. Tanaka Ke. Structural phase transitions in chalcogenide glasses // Phys. Rev. B.— 1989.— Vol. 39, N 2.— P. 1270—1279.
11. Boolchand P., Georgiev D. G., Micolaut M. Nature of glass transition in chalcogenides // J. Optoelectron. Adv. Mater.— 2002.— Vol. 4, N 4.— P. 823—836.