

КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ОБЛУЧЕННЫХ НЕЙТРОНАМИ ПОЛИКРИСТАЛЛАХ АЛМАЗА

В.С. Горелик, В.И. Гордеев, В.А. Николаенко, Т.Ф. Файзулло

Обнаружены сильные сдвиги и уширения линии комбинационного рассеяния света на фундаментальном колебании алмазов, подвергнутых облучению в атомном реакторе.

Анализ спектров комбинационного рассеяния (КР) алмазов, подвергнутых облучению потоком нейтронов, представляет интерес в связи с возможностью установления общих закономерностей в колебательных спектрах кристаллов простой структуры, подвергнутых радиационным воздействиям, и в связи с реализацией новых методов радиационного контроля активных зон атомных реакторов.

Исследуемые образцы — порошки природного алмаза с размером зерен от 14 до 20 мкм — подвергались воздействию нейтронного потока в исследовательском атомном реакторе, после чего они стали непрозрачными в видимой области спектра. Для возбуждения спектров КР использовалось излучение импульсного лазера на парах меди с длиной волны 510,554 нм. Длительность импульса излучения составляла ~ 20 нс, частота повторения импульсов ~ 10 кГц. Средняя мощность лазерного излучения, падавшего на образец, не превышала 100 мВт. Пучок фокусировался в виде прямоугольного пятна площадью 1 мм². При этих условиях заметного нагрева образцов не происходило.

Сигнал КР регистрировался с помощью модифицированного спектрометра типа ДФС-24 с применением метода счета фотонов и многократного сканирования с накоплением сигнала. Благодаря этому стало возможным получить сигнал КР с хорошим соотношением сигнал/шум при малой возбуждающей мощности для образцов, непрозрачных в видимой области спектра. Импульсный характер излучения возбуждающего лазера позволил применить технику синхронного стробирования [1], вследствие чего регистрируемый фон люминесценции образцов был значительно ослаблен.

На рис. 1 показан общий вид полученных спектров в диапазоне 1200–1800 см⁻¹. Кривая а представляет спектр монокристалла алмаза, не подвергнутого облучению, кривые б – г соответствуют различным дозам облучения в диапазоне 10¹⁸ – 10²¹ см⁻². Более детальная картина изменений линии КР на фундаментальном колебании алмаза F_{2g} в диапазоне 1300 – 1360 см⁻¹ показана на рис. 2. Как видно из приведенных рисунков, по мере увеличения дозы облучения нейтронами спектр КР поликристаллов алмаза видоизменяется следующим образом: 1) обнаруживается уменьшение частоты линии КР на фундаментальном колебании, величина которой зависит от дозы облучения; 2) происходит уширение обсуждаемой линии КР и нарушение симметрии контура при больших дозах; 3) происходит уменьшение интенсивности спектра КР и относительное возрастание фона люминесценции; 4) при больших дозах облучения возникает широкая полоса в спектре КР, имеющая максимум в области 1500 – 1600 см⁻¹ и простирающаяся в сторону более высоких частот.

Уменьшение частоты линии КР фундаментального колебания при нейтронном облучении можно объяснить возникновением растягивающих напряжений. В результате этого должно происходить уменьшение плотности алмаза и возрастание периода его кристаллической решетки. Действительно, как показали исследования дифракции рентгеновских лучей, при облучении алмазов нейтронами происходит возрастание объема их элементарной ячейки. Анализ спектров КР для тех же образцов, которые были изучены методом рентгеновской дифракции, показал, что наибольшие сдвиги частот и уширения наблюдаются для тех кристаллов, у которых произошло наибольшее относительное изменение объема элементарной ячейки.

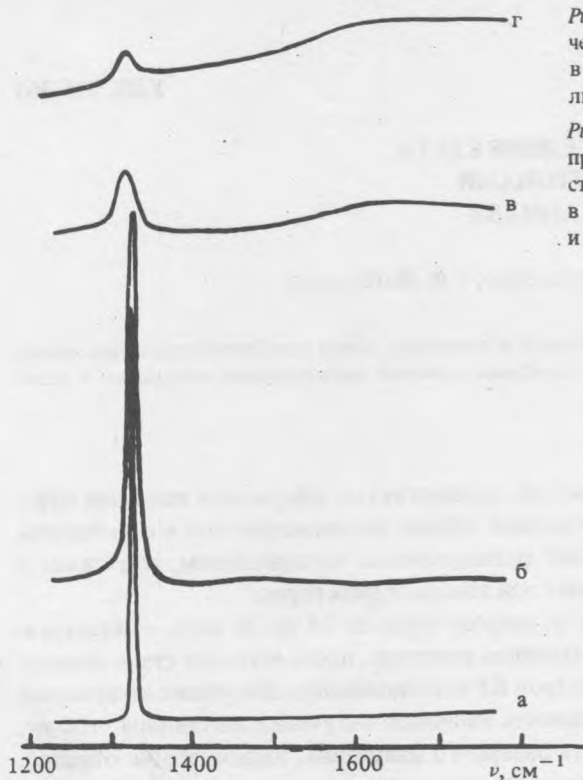


Рис. 1. Спектры КР алмаза в широком диапазоне спектра: а – необлученный монокристалл; б – относительное увеличение объема 0,24 %; в – относительное увеличение объема 0,74 %; г – относительное увеличение объема 0,84 %.

Рис. 2. Изменение спектра КР на фундаментальном колебании алмаза при увеличении относительного объема элементарной ячейки под действием нейтронного потока: а – реперный порошок, 0%; б – 0,07%; в – 0,14%; г – 0,18%; д – 0,24%; е – 0,35%; ж – 0,80%; з – 0,86%; и – 1,00%.

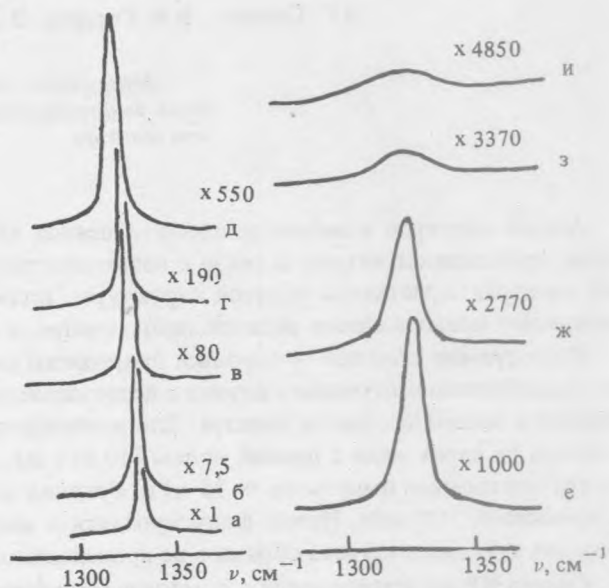


Таблица 1

Параметры линии КР на фундаментальном колебании алмаза в зависимости от относительного объема элементарной ячейки.
Энергия нейтронов $E = 0,5$ МэВ; время облучения 50 – 1500 часов.

№ образца	Частота, см ⁻¹	Сдвиг, см ⁻¹	Ширина, см ⁻¹	Относительное увеличение объема, %	Поток, см ⁻² час ⁻¹
1	1332,0	—	3,1	—	—
2	1330,2	1,8	3,8	0,07	$1 \cdot 10^{16}$
3	1330,1	1,9	4,4	0,14	$6 \cdot 10^{16}$
4	1326,5	5,5	6,6	0,18	$2 \cdot 10^{17}$
5	1326,5	5,5	8,1	0,24	$7 \cdot 10^{16}$
6	1323,8	8,2	11,3	0,35	$8 \cdot 10^{17}$
7	1320,7	11,3	15,6	0,80	$7 \cdot 10^{17}$
8	1317,9	14,1	18,9	0,86	$1,2 \cdot 10^{17}$
9	1316,3	15,7	31,4	1,00	$8 \cdot 10^{17}$

Исследуемые образцы не удалось облучить при одинаковых условиях. Различными были время облучения, расположение в реакторе и интенсивность нейтронного потока. Однако мерой дозы облучения является возникающее относительное изменение объема элементарной ячейки, измеренное методом рентгеновской дифракции. В табл. 1 и на рис. 3 приведены данные о зависимости параметров КР от

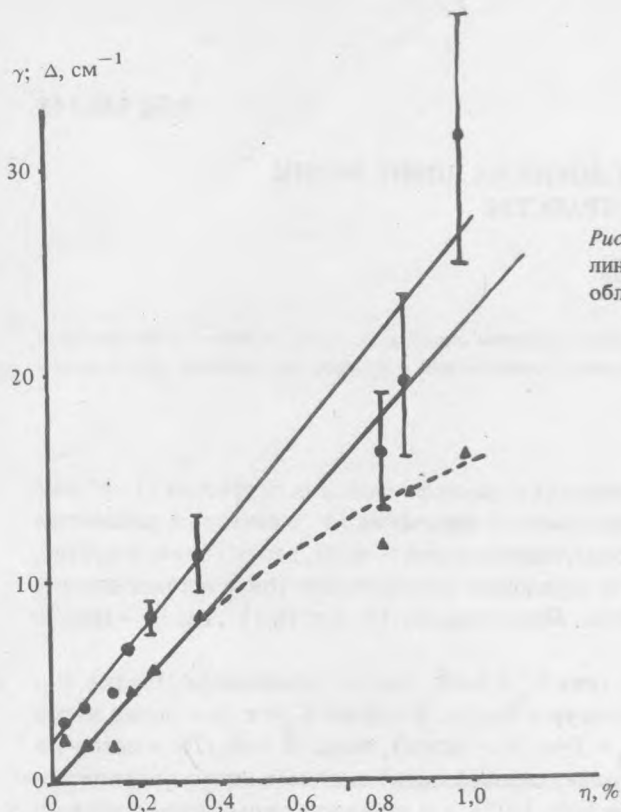


Рис. 3. Зависимость сдвига частоты Δ (●) и уширения γ (▲) линии КР алмаза от относительного изменения объема η облученных образцов

относительного изменения объема исследуемых алмазов. Как видно, с увеличением объема наблюдается систематическое возрастание ширины и сдвига частоты максимума линии КР.

Возникновение в спектрах КР облученных образцов при больших дозах дополнительной полосы, начинающейся с 1500 см^{-1} , можно объяснить, согласно [2], фазовым переходом части материала в графитную модификацию, а также частичной аморфизацией под действием нейтронного облучения. Наблюдаемое десятикратное (табл. 1) возрастание ширины линии КР в алмазе можно объяснить возникновением неоднородных напряжений кристаллической решетки в результате искажений, вызванных действием нейтронного потока. Среднюю величину этих напряжений можно оценить, используя данные [3] о зависимости частоты фундаментального колебания от давления. Эта зависимость является линейной в широком интервале давлений и коэффициент пропорциональности равен $2,87 \text{ см}^{-1}/\text{ГПа}$. Отсюда получаем, что в образцах, испытывавших в результате облучения нейтронами наибольшее расширение решетки, растягивающие напряжения составляют около $5,5 \text{ ГПа}$.

Таким образом, в данной работе впервые установлено, что под влиянием нейтронного потока атомного реактора в спектре КР кристаллов алмаза происходят существенные изменения. При больших дозах облучения обнаружены сдвиги частоты линии до 15 см^{-1} и уширение линии с $1,8$ до 30 см^{-1} . Большие уширения линии КР объяснены возникновением неоднородных напряжений кристаллов облученного нейтронами алмаза.

ЛИТЕРАТУРА

1. Агальцов А.М., Горелик В.С., Файзуллов Т.Ф. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 2, 188 (1982).
2. Буйлов Л.Л. и др. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 11, 29 (1986).
3. Vorpert H., Silveria I.F., Straaten J. Phys. Rev. B, 32, 1423 (1985).

Поступила в редакцию 28 сентября 1990 г.