

ИССЛЕДОВАНИЕ РЕЛАКСАЦИИ РАДИАЦИОННО-НАВЕДЕННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ В ПОЛИМЕРНОМ ОПТИЧЕСКОМ ВОЛОКНЕ

Коновалов¹ А.А., Ткачев² О.В., Дубровских² С.М., Кокшарова² К.Д., Кустов² А.С.

¹Снежинский физико-технический институт

Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», Челябинская область

²ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ им. академ. Е.И.Забабакхина», Снежинск, Челябинская обл.

dep5@vniitf.ru

Аннотация. На примере полимерного волокна рассмотрены эффекты, обусловленные термическим и оптическим отжигом радиационно-наведенных центров окраски, созданных гамма-излучением.

Ключевые слова: отжиг радиационных дефектов, гамма-излучение, оптическое волокно, энергия активации, центры окраски, радиационно-наведенное поглощение.

STUDY OF RADIATION-INDUCED ABSORPTION RELAXATION IN POLYMER OPTICAL FIBER

A.A. Konovalov¹, O.V. Tkachev¹, S.M. Dubrovskih², K.D. Koksharova², A.S. Kustov¹,

¹Snezhinsk Physics Technology Institute of the National Research Nuclear University MEPHI, Chelyabinsk region

²FSUE RFNC-VNIITF named after Acad. E.I.Zababakhin, Snezhinsk, Chelyabinsk region

dep5@vniitf.ru

Abstract. Using polymer fiber as an example, the effects, conditional upon thermal and optical annealing of radiation-induced color centers, created by gamma-radiation, have been examined.

Keywords: radiation damage annealing, gamma-radiation, optical fiber, activation energy, color centers, radiation-induced absorption.

Применение различных оптических систем в ракетно-космической технике и в других системах ответственного применения предполагает наличие информации о радиационной стойкости. Анализ результатов исследований показывает, что наиболее чувствительными к ионизирующему излучению являются протяженные оптические элементы, например, оптические волокна. Как правило, приводимая в литературе информация о радиационных характеристиках волокон получена при нормальных климатических условиях, при этом, например, для аппаратуры, предназначенной для установки на внешней поверхности космических аппаратов без применения мер защиты, уровни требуемых рабочих температур лежат в диапазоне (-200...+200) °С. Обычно измерения осуществляются только на рабочих длинах волн и при низких плотностях излучения. Результаты экспериментов показывают, что радиационно-наведенное поглощение (РНП) в оптических волокнах существенно зависит от условий, при которых выполнены измерения: температуры, длины волны и плотности мощности оптического излучения, которым тестируют оптические элементы.

В последнее время, в качестве альтернативы традиционным кабельным линиям связи, применяются полимерные оптические волокна на основе полиметилметакрилата (РММА). Большой диаметр волокна и рабочий диапазон длин волн, приходящийся на видимую область, облегчают работу с данным типом волокна. Исследования радиационной деградации РММА наиболее полно отражены в работах *T.Ichikawa* [1, 2]. Различными методами спектрометрии исследованы процессы разрушения полимерных цепочек и образования радикалов при облучении гамма-квантами. Исследования проведены в широком температурном диапазоне от 77 до 300 К. В работе [3] РММА волокно предлагается

использовать в качестве “online” детектора дозы гамма-излучения. Вариация длины волны зондирующего излучения позволяет варьировать радиационную чувствительность датчика и предельный измеряемый диапазон доз от 30 Гр до 45кГр. Следует отметить, что в известных авторам источниках, не достаточно подробно рассмотрено влияние термо- и фотостимуляции на длительность релаксации РНП после облучения. Наличие фотостимулированного отжига радиационных дефектов может существенно повысить радиационную стойкость оптических элементов. Так, в работе [4] было показано, что с помощью фотоотжига удается восстановить гамма- облученные кристаллы YAG:Nd³⁺.

1 Методика эксперимента

1.1 Образцы

В работе в качестве образца использовали полимерное волокно на основе РММА с диаметром сердцевины и оболочки 980/1000 мкм.

В экспериментах исследовали релаксацию радиационно-наведенного поглощения в волокне при нагреве (термический отжиг) и при пропускании через волокно оптического излучения (фотостимулированный отжиг).

Облучение образцов осуществляли гамма-квантами изотопного источника ⁶⁰Со, средняя мощность экспозиционной дозы составляла ~100 Р/с. Облучению подвергали отрезки волокна длиной L=3 м, которые при этом находились в термостате с жидким азотом (T ≈ -196 °C).

1.2 Термический отжиг

Восстановление пропускной способности волокна исследовали при импульсном и квазистатическом режиме нагрева. Импульсный нагрев волокон осуществлялся со скоростью ≈ 10 °C/с. При квазистатическом режиме скорость нагрева составляла ≈ 1 °C/мин, данная скорость была выбрана исходя из того, что длительность релаксационных процессов РНП при импульсном нагреве во всём исследуемом диапазоне температур составляет не более 1 мин. Для достижения низких температур использовали жидкий азот, а регулировку скорости нагрева осуществляли с помощью нагревателя, расположенного в термостате. В данных экспериментах, для исключения влияния оптического излучения на релаксацию радиационных дефектов, источник зондирующего излучения включали только в момент измерения.

1.3 Фотостимулированный отжиг

В качестве источников оптического излучения, с помощью которых диагностировали волокна, а также осуществляли фотоотжиг, использовали:

- лампу накаливания (непрерывный спектр, рис. 2);
- светодиоды с пиковой длиной волны 400, 505, 640, 850 нм;
- лазерный диод с длиной волны 532 нм.

Мощность оптического излучения контролировали с помощью оптического ваттметра.

2 Результаты эксперимента

В экспериментах в процессе облучения контролировали светопропускание волокна. Для примера, на рис. 1 представлена зависимость мощности зондирующего источника с длиной волны 505 нм на выходе волокна ($P_{\text{вых}}$) от величины экспозиционной дозы. Облучение и измерения выполнены при температурах +26 и -196 °C.

Из представленной зависимости видно, что РНП в исследуемом волокне зависит от температуры: так, при экспозиционной дозе ≈ 4 кР в случае температуры жидкого азота светопропускание уменьшилось на 95 %, а при комнатной температуре изменение не превысило погрешность измерений.

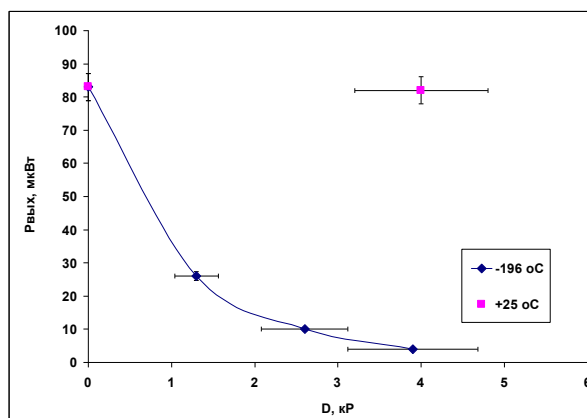


Рис. 1. Светопропускание волокна на длине волны 505 нм в зависимости от уровня нагружения: D – экспозиционная доза, P ; $P_{\text{вых}}$ – мощность оптического излучения на выходе волокна, мкВт

2.1 Термический отжиг

2.1.1 Квазистатический нагрев

На рис. 2 представлен спектр лампы накаливания на входе волокна, на выходе волокна до облучения, после облучения экспозиционной дозой $D = 150$ кР при различных температурах отжига.

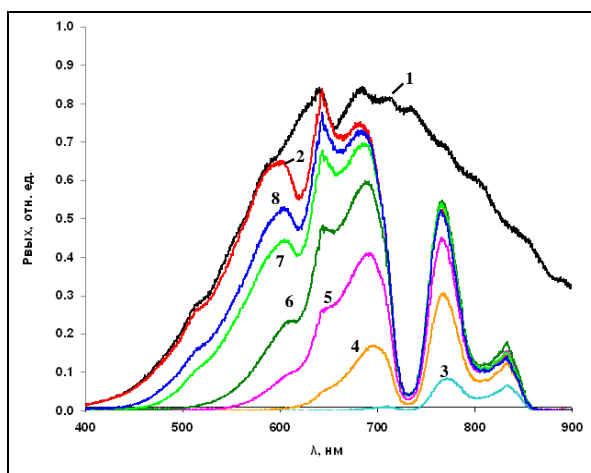


Рис. 2. Спектры лампы накаливания: 1 – на входе волокна; 2 – на выходе волокна до облучения; 3-8 – на выходе волокна после облучения при различных температурах отжига (3 – “ -150 °C”, 4 – “ -140 °C”, 5 – “ -130 °C”, 6 – “ -110 °C”, 7 – “ -60 °C”, 8 – “ -10 °C”)

Из представленных на рис. 2 спектров видно, что с нагревом волокна сначала восстанавливаются длинноволновые области спектра, а по мере увеличения температуры светопропускание волокна становится близким к исходному.

2.1.2 Импульсный нагрев

На рис. 3 представлено восстановление светопропускания облученного волокна ($D = 150$ кР) во времени при импульсном нагреве. Измерения проводили на трёх длинах волн зондирующего излучения: 640, 505, 400 нм. В данном эксперименте температура волокна изменялась от -196 до $+40$ °С.

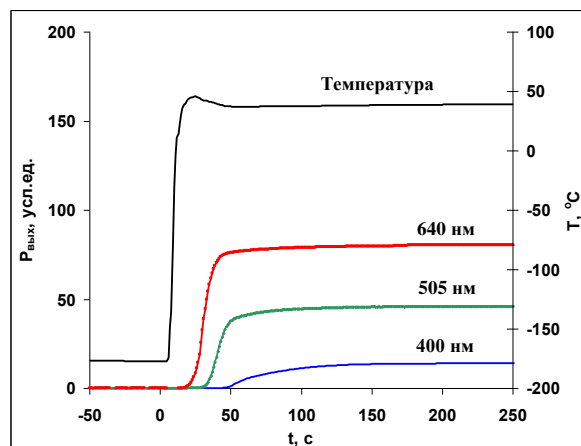


Рис. 3. Восстановление светопропускания волокна при импульсном нагреве, $D = 150$ кР

Из рис. 3 видно, что после нагрева восстановление образца происходит с задержкой, величина которой зависит от спектра сканирующего излучения. Так, в случае светодиода со спектром 400 нм задержка составляет около 40 секунд.

2.2 Фотостимулированный отжиг

2.2.1 Восстановление светопропускания волокна

Эксперименты показали, что при пропускании через облученное волокно оптического излучения характеристики волокна (на данной длине волны) практически полностью восстанавливаются. Так, на рис. 4 представлены временные зависимости восстановления светопропускания волокна при пропускании через него оптического излучения 530 нм мощностью 0,1 мВт. Зависимости получены для различных уровней облучения: 4, 10 и 30 кР.

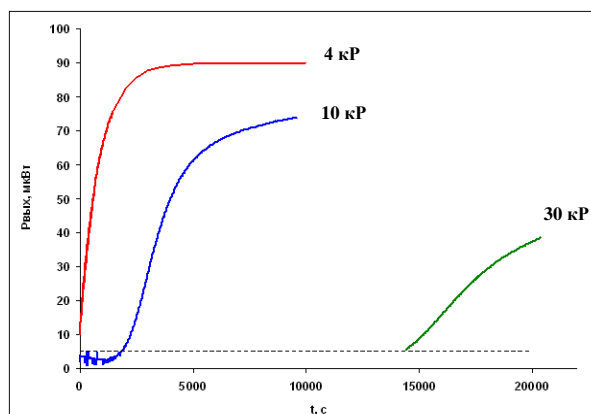


Рис. 4. Восстановление светопропускания облучённого волокна при пропускании через него оптического излучения (пунктирной линией показан уровень помех)

Из рис. 4 видно, что при уровнях воздействия 10 кР и выше оптический сигнал на выходе волокна появляется с задержкой, длительность которой зависит от уровня воздействия.

На рис. 5 представлены зависимости времени восстановления светопропускания волокна $t_{\text{рел}}$ на уровне 0,5 от величины экспозиционной дозы. Зависимости получены при мощности вводимого в волокно оптического излучения 0,06 и 3 мВт.

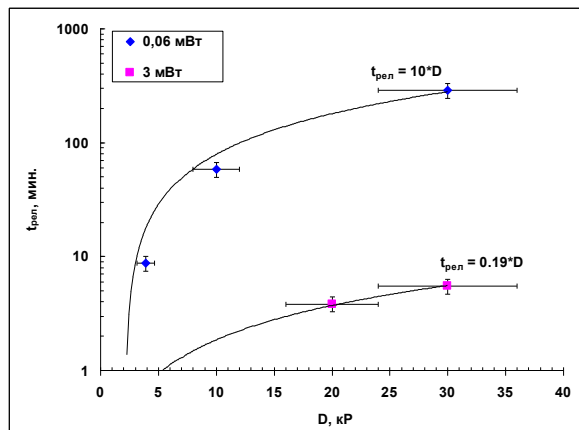


Рис. 5. Зависимость времени восстановления волокна при фотоотжиге ($\lambda \approx 520$ нм) от дозы облучения

Из представленных на рис. 5 данных видно, что с ростом дозы облучения время восстановления светопропускания волокна линейно возрастает. С увеличением мощности пропускаемого оптического излучения в ≈ 50 раз время восстановления в ≈ 50 раз уменьшается.

Пространственное распределение РНП

При осуществлении фотостимулированного отжига отдельные участки волокна находятся в различных условиях: плотность потока оптического излучения убывает при удалении от источника (в общем случае по закону Бугера), следовательно, после обработки оптическим излучением в волокне будет иметь место неравномерное распределение РНП.

Для определения профиля РНП в облучённом волокне был проведён дополнительный эксперимент, основанный на том, что волокно при температуре выше 0°C полностью восстанавливается (см. рис. 2), а следовательно, постепенно извлекая волокно из термостата с азотом и одновременно сканируя его оптическим излучением, можно определить профиль поглощения в волокне. В эксперименте облученное волокно ($D \approx 10$ кР) длиной 3 м, помещенное в жидкий азот, предварительно было подвергнуто фотостимуляции оптическим излучением (532 нм), так что при $P_o = 50$ мкВт на входе волокна регистрируемая мощность на выходе составляла 1 мкВт. Затем волокно со скоростью 10 см/мин извлекали из термостата и периодически измеряли его светопропускание. Результаты эксперимента представлены на рис. 6.

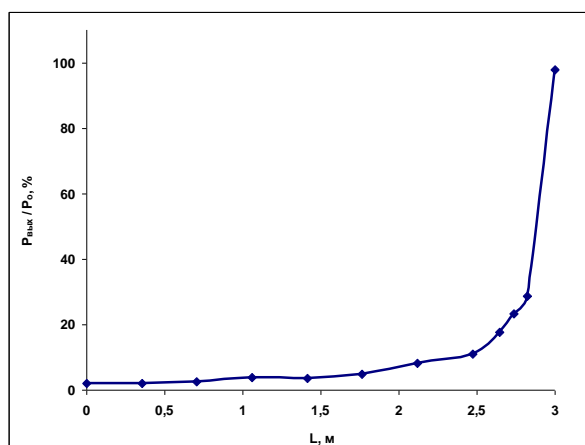


Рис. 6. Профиль относительного светопропускания облучённого волокна по его длине после частичного восстановления оптическим излучением 532 нм

Из представленных на рис. 6 данных видно, что после предварительной обработки волокна оптическим излучением, профиль относительного светопропускания неоднородный, с резким фронтом нарастания, составляющим несколько десятков сантиметров. Данное обстоятельство является важным для мощных волоконных лазерных систем, так как подобный резкий профиль РНП может приводить к локальному разогреву волокна, вплоть до его разрушения.

Селективность фотостимулированного отжига

Результаты исследований показали, что спектр пропускания волокна после фотостимуляции определяется спектром источника, излучением которого осуществляется отжиг.

На рис. 7 представлены спектры лампы накаливания на выходе волокна после фотостимуляции излучением лазеров 532, 632 и 850 нм. Эксперименты осуществляли при температуре $-196\text{ }^{\circ}\text{C}$ для исключения влияния термического отжига.

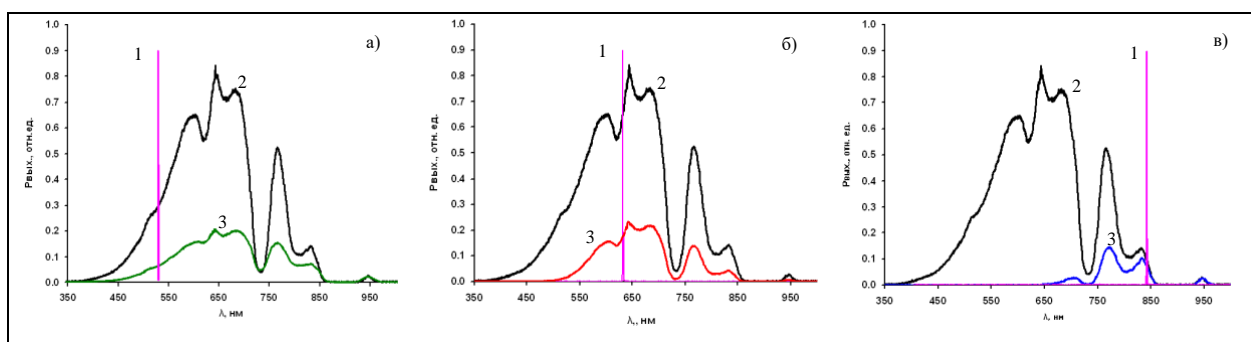


Рис. 7. Результаты фотостимулированного отжига облучённого волокна при использовании различных источников оптического излучения с длиной волны: а – 532; б – 632; в – 850 нм; 1 – спектр источника оптического излучения; 2 – спектр лампы накаливания на выходе волокна до облучения; 3 – спектр лампы накаливания на выходе волокна после облучения дозой 20 кР и восстановления лазерным излучением

Из рис. 7 видно, что фотоны определенной длины волны восстанавливают, главным образом, длинноволновый по отношению к стимулирующему излучению участок спектра.

Анализ результатов эксперимента

Коэффициент РНП

Как было показано в экспериментальном разделе (см. рис. 1), гамма-облучение волокна приводит к увеличению поглощения оптического излучения, проходящего через волокно, что связано с ростом концентрации радиационных дефектов – центров окраски. Количественно эффект можно характеризовать коэффициентом РНП $\Delta\alpha$. Используя закон Бугера для изотропной среды, $\Delta\alpha$ можно определить следующим образом

$$\Delta\alpha = \frac{1}{L} \ln \left(\frac{P_{\text{вых}}^{\text{необл}}}{P_{\text{вых}}^{\text{обл}}} \right)$$

где $P_{\text{вых}}^{\text{необл}}$, $P_{\text{вых}}^{\text{обл}}$ - мощность излучения на выходе волокна до облучения и после.

На рис. 8 представлена зависимость коэффициента $\Delta\alpha$ от уровня воздействия излучения на волокно, данные получены при температуре жидкого азота.

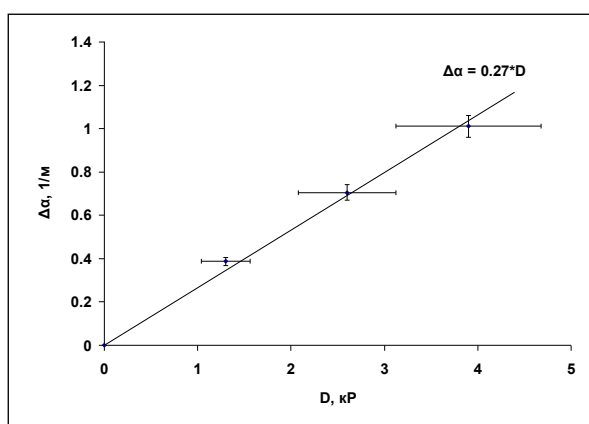


Рис. 8. Дозовая зависимость коэффициента РНП в оптоволокне на длине волны 505 нм. $T = -196^\circ\text{C}$

Как видно из рис. 8, в исследованном диапазоне доз экспериментальные точки удовлетворительно аппроксимируются линейной зависимостью. При дозе облучения 4 кР величина $\Delta\alpha \approx 1 \text{ м}^{-1}$.

Термический отжиг

Импульсный нагрев

На основании данных рис. 3 на рис. 9 представлено время восстановления светопропускания волокна (по уровню 0,1) при импульсном нагреве для различных энергий фотонов сканирующего излучения.

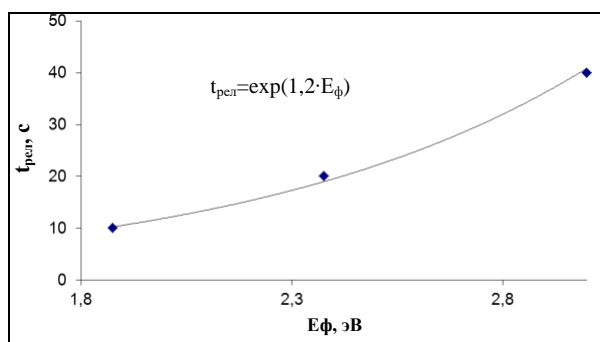


Рис. 9. Время восстановления пропускания волокна при его импульсном нагреве для различных энергий фотонов сканирующего излучения

Из рис. 9 видно, что в исследованном диапазоне длин волн время релаксации t экспоненциально зависит от энергии фотонов зондирующего излучения E_ϕ , т.е. в исследуемом типе волокна имеются различные центры окраски, которые различаются энергией активации и сечением поглощения фотонов различных энергий.

Полагая, что время релаксации t подчиняется закону Аррениуса

$$t_i \sim e^{\frac{E_{ai}}{kT}},$$

где k – постоянная Больцмана; E_{ai} – энергия активации радиационных дефектов типа « i », можно предположить, что эффективная энергия активации дефектов, взаимодействующих с фотонами различных энергий, также отличается. Из результатов эксперимента (см. рис. 9) следует, что эффективная энергия активации дефектов связана с энергией фотона соотношением вида

$$E_{ai} = a E_\phi + \beta.$$

Коэффициент a можно оценить из данных, представленных на рис. 9. Так, из аппроксимации экспериментальных точек видно, что $a/kT \approx 1,2$ (эВ⁻¹), а так как нагрев осуществляли до температуры 40 °С, то коэффициент $a \approx 0,03$.

Квазистационарный нагрев

Ранее было отмечено (см. рис. 2), что с нагревом облученного волокна спектр пропускания восстанавливается, начиная с длинноволновой составляющей, и расширяется в область коротких длин волн (в область фотонов высоких энергий). На основании спектральных измерений построена зависимость граничной энергии фотонов – коротковолновой части спектра излучения, прошедшего через волокно (на уровне 0,1) от температуры (рис. 10). Данные представлены в координатах: по оси абсцисс $1/kT$, по оси ординат E_ϕ . Также на данном рисунке представлены результаты аппроксимации отдельных участков экспоненциальной функцией.

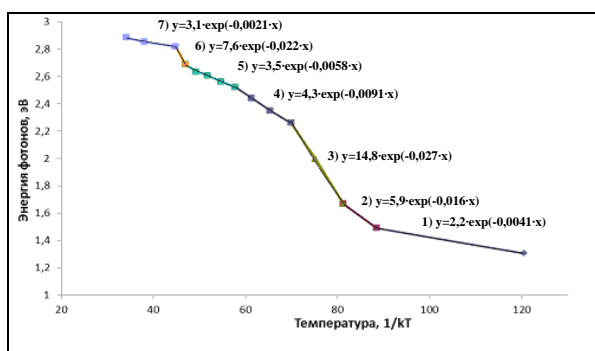


Рис. 10. Кривая термостимулированного отжига облучённого волокна: 1) 950-832 нм; 2) 832-744 нм; 3) 744-549 нм; 4) 549-492 нм; 5) 492-461 нм; 6) 461-440 нм; 7) 440-430 нм

Из рис. 10 видно, что полученная зависимость имеет ряд изломов, что также говорит о наличии радиационных дефектов с различной энергией активации, что согласуется с данными работ [1, 2].

Полагая, что вероятность релаксации радиационного дефекта пропорциональна бoльцмановскому множителю:

$$P \sim e^{-\frac{E_{ai}}{kT}},$$

то, используя представленные на рис. 10 данные, можно оценить «эффективную» энергию активации дефектов, взаимодействующих с фотонами различных энергий. На рис. 11 представлены величины E_{ai} в зависимости от энергии фотонов, с которыми данный тип дефектов взаимодействует, полученные по результатам квазистатического нагрева волокна. При обработке кривой термостимулированного отжига исходили из положения, что при повышении температуры происходит активация центров окраски с большей E_{ai} . Участки кривой, где данное условие не соблюдалось, не учитывали. Данному условию не удовлетворяет начальная часть зависимости (30-70 эВ). Вероятно, это связано с недостаточным временем выдержки волокна при данных температурах.

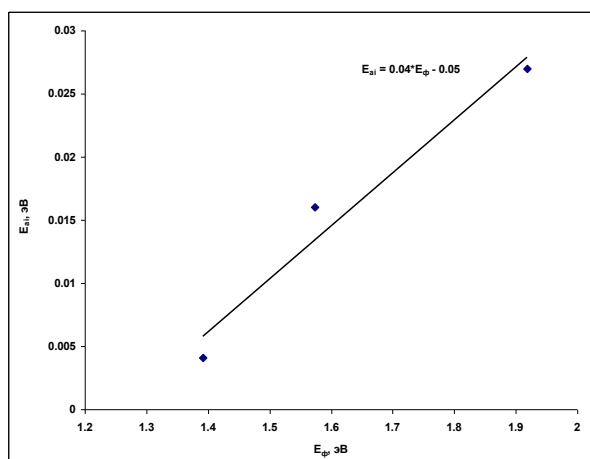


Рис. 11. Зависимость энергии активации радиационных дефектов от энергии фотонов сканирующего излучения

Из рис. 11 видно, что в первом приближении зависимость энергии активации от энергии фотонов можно аппроксимировать выражением $E_{ai} \approx 0,04 \cdot E_\phi - 0,05$ (эВ), т.е. линейной функцией вида

$$E_{ai} = a E_\phi + \beta.$$

При этом для импульсного и квазистатического нагрева коэффициенты a практически равны.

Фотостимулированный отжиг

На основании представленных на рис. 5 данных, на рис. 12 построена зависимость энергии оптического излучения ($\lambda = 505$ нм), которую необходимо пропустить через волокно до его восстановления W , от величины экспозиционной дозы облучения.

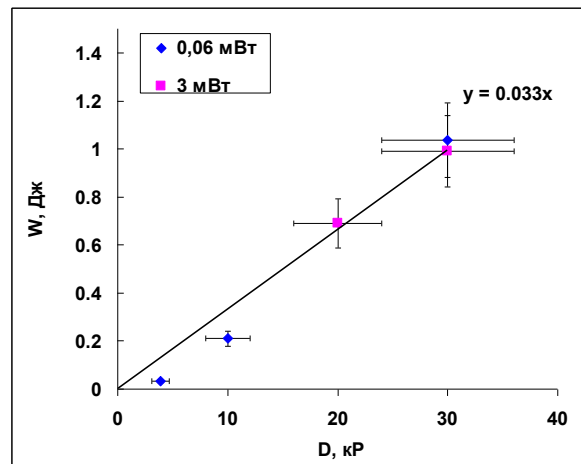


Рис. 13. Зависимость энергии оптического излучения, необходимой для восстановления светопропускания волокна, от величины экспозиционной дозы, которой волокно было облучено

Из представленного рисунка видно, что в исследованном диапазоне доз, имеет место линейная зависимость между поглощенной в волокне энергией ионизирующего излучения, что в итоге и определяет РНП, и энергией, необходимой для опустошения радиационных центров окраски. Тот факт, что релаксация РНП зависит от энергии, а не от мощности оптического излучения (мощность варьировали более чем на порядок) говорит о том, что фотоотжиг не связан с многофотонным взаимодействием и прогревом образцов оптическим излучением, а обусловлен опустошением фотонами центров окраски.

Используя тот факт, что время восстановления облученного волокна прямо пропорционально величине экспозиционной дозы и обратно пропорционально мощности оптического излучения, а также учитывая, что фотоотжиг сосредоточен в области с характерным размером ~ 10 см, что значительно меньше длины исследованных образцов (см. рис. 6), то можно оценить скорость распространения фронта восстановления волокна v как

$$v \approx \frac{L}{t_{\text{рел}}},$$

где L – длина волокна.

Учитывая зависимость $t_{\text{рел}} \approx 3 \cdot 10^{-5} \frac{D}{S}$ (см. рис.5 и рис. 13), где S – мощность стимулирующего оптического излучения, Вт; D – экспозиционная доза, Р, получим, что скорость распространения фронта отжига можно выразить как

$$v \approx k \frac{S}{D},$$

где коэффициент $k \sim 1 \cdot 10^5 \left(\frac{\text{Р} \cdot \text{м}}{\text{Дж}} \right)$.

Таким образом, в отличие от термического отжига, скорость восстановления светопропускания волокна при фотостимулированном отжиге прямо пропорциональна мощности оптического излучения и обратно пропорциональна дозе ионизирующего излучения.

Заключение

В работе исследовали релаксацию радиационных центров окраски, образованных в полимерном волокне гамма-излучением изотопного источника ^{60}Co . Отжиг осуществляли при импульсном и квазистатическом нагреве волокон, а также пропуская через образцы оптическое излучение.

Из экспериментов по термическому отжигу получено, что «эффективная» энергия активации дефектов E_{ai} , взаимодействующих с фотонами энергии E_{ϕ} связана соотношением вида $E_{ai} = 0,04 E_{\phi} - 0,05$, т.е. для восстановления коротковолновой части спектра пропускания облученного волокна необходимы более высокие температуры.

Исследования по фотостимулированному отжигу облученного волокна показали, что фотоны определенной длины волны восстанавливают, главным образом, длинноволновый по отношению к стимулирующему излучению участок спектра. При этом, скорость восстановления волокна прямо пропорциональна мощности стимулирующего излучения и обратно пропорциональна дозе ионизирующего излучения, что доказывает, что эффект обусловлен опустошением центров окраски фотонами стимулирующего излучения.

Измерения пространственного распределения радиационно-наведенного поглощения, выполненные после частичного фотостимулированного отжига облученного волокна, показали, что энергия оптического излучения концентрируется в области ~ 10 см. Тот факт, что оптическое излучение сосредоточено в достаточно малой области необходимо учитывать при разработке мощных волоконных лазерных систем, так как может приводить к локальному разогреву волокна, вплоть до его разрушения.

Использованные источники:

1. Ichikawa T., Yoshida H. Mechanism of radiation-induced degradation of poly(methyl methacrylate) as studied by ESR and electron spin echo methods // Journal of Polymer Science: Part A: Polymer Chemistry, vol.28. 1990. p.1185-1196.
2. Ichikawa T. Mechanism of radiation-induced degradation of poly(methyl methacrylate) - temperature effect // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 1995. p.105-153.
3. O'Keeffe S., Lewis E. Polymer optical fibre for in situ monitoring of gamma radiation processes // International Journal on Smart Sensing and Intelligent Systems. Vol.2,NO.3. 2009. p.490-502.
4. Дубровских С.М., Ткачев О.В., Шукайло В.П., Купырина Т.В.. Фотостимулированное восстановление оптических характеристик гамма-облученных кристаллов YAG:Nd^{3+} // Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика радиационного воздействия на радиоэлектронную аппаратуру. 2020. Вып. 1. С. 18-24.