

Термолюминесценция анион-дефектных монокристаллов оксида алюминия после высокодозного облучения наносекундными импульсами электронов

© С.В. Никифоров, В.С. Кортон, С.В. Звонарев, Е.В. Моисейкин

Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина,
620002 Екатеринбург, Россия
e-mail: s.v.nikiforov@ustu.ru

(Поступило в Редакцию 27 марта 2013 г.)

Исследовано влияние глубоких ловушек, заполняемых импульсным пучком электронов, на термолюминесценцию (ТЛ) дозиметрического пика при 450 К в анион-дефектных монокристаллах оксида алюминия. После заполнения глубоких ловушек дозиметрический пик ТЛ становится неэлементарным и характеризуется сложной зависимостью интенсивности ТЛ от температуры отжига кристаллов с чередующимися участками спада и роста. Проведен анализ влияния заселенности глубоких центров различной природы и энергетической глубины на изменение структуры дозиметрического ТЛ пика. Обосновано предположение, что в диапазонах температур 600–750 и 900–1000 К опустошаются преимущественно электронные ловушки, а при $T = 780$ –900 и свыше 1000 К — дырочные. Показана возможность использования ТЛ глубоких ловушек для высокодозной дозиметрии импульсных пучков электронов.

Введение

Люминесценция анион-дефектных монокристаллов Al_2O_3 является предметом интенсивных исследований в связи с их широким применением в дозиметрии ионизирующих излучений [1,2]. Известно, что многие особенности люминесценции этих кристаллов связаны с присутствием глубоких центров захвата [3,4]. Состояние заселенности глубоких ловушек в исследуемых кристаллах влияет на интенсивность термолюминесценции (ТЛ) в дозиметрическом пике при 450 К [3–7], на зависимость светосуммы дозиметрического пика ТЛ от скорости нагрева [4,5,8], на форму кривой ТЛ [4,6], эффективность температурного тушения люминесценции [5,8], степень линейности дозовой характеристики [5,9]. Кроме того, заполнение глубоких центров уменьшает разброс чувствительности ТЛ детекторов на основе Al_2O_3 в партии [10]. Предложенный в [11] способ обработки материала ТЛ детектора, заключающийся в заполнении глубоких ловушек ультрафиолетовым (УФ) излучением при высоких температурах, позволил существенно улучшить их дозиметрические характеристики.

Однако заполнение глубоких ловушек УФ-облучением образцов при температурах не менее 600 К затрудняет его практическую реализацию. В этой связи перспективно применение импульсных интенсивных пучков электронов с энергией 100–300 keV для заполнения глубоких ловушек при комнатной температуре. При использовании пучков электронов с подпороговыми для дефектообразования энергиями процесс преобразования центров захвата и рекомбинации сводится только к изменению их зарядовых состояний. При воздействии интенсивного электронного пучка за счет высокой плотности ионизации эффективно заполняются ловушки носителей заряда различного знака и различной энергетической

глубины. Возможность эффективного заполнения глубоких центров в анион-дефектных монокристаллах оксида алюминия импульсным электронным пучком при комнатной температуре доказана путем наблюдения высокотемпературного пика ТЛ при 750 К [12]. Однако влияние глубоких ловушек, заполняемых импульсным электронным пучком, на люминесцентные и дозиметрические свойства кристаллов слабо изучено. Можно ожидать также, что такое исследование позволит уточнить природу глубоких ловушек, связанных с конкретными высокотемпературными пиками ТЛ, относительно которой, согласно литературным данным, нет единого мнения [3,6,7,13–16].

Изучение ТЛ глубоких ловушек в монокристаллах Al_2O_3 после импульсного электронного облучения представляет и самостоятельный интерес с точки зрения оценки возможности их использования для дозиметрии сильноточных электронных пучков, находящихся все большее применение в научных исследованиях и в развивающихся технологиях радиационной обработки материалов и изделий.

Цель настоящей работы заключалась в исследовании влияния глубоких ловушек, заполняемых сильноточным импульсным пучком электронов, на ТЛ анион-дефектных монокристаллов оксида алюминия.

Образцы и экспериментальные методы

Исследовались образцы детекторов ионизирующих излучений ТЛД-500 К, изготовленных на основе анион-дефектных монокристаллов $\alpha-Al_2O_3$, выращенных методом Степанова в восстановительных условиях. Концентрация F -центров по данным оптического поглощения составила величину порядка 10^{17} cm^{-3} . Исследуемые

детекторы имели форму дисков толщиной 1 mm, диаметром 5 mm и были прозрачны. Глубокие ловушки заполнялись при облучении образцов на воздухе при комнатной температуре электронным пучком ускорителя с длительностью импульса 2 ns и средней энергией электронов 130 ± 1 keV при плотности тока 60 A/cm². Облучение проводилось одиночным импульсом или последовательностью импульсов, следующих с частотой 1 Hz. Поглощенная доза при облучении одним импульсом в месте расположения образца была определена экспериментально и составила 1.5 kGy [17]. Для исследования влияния заполнения глубоких центров на ТЛ дозиметрического пика при 450 К образцы предварительно нагревались до $T = 600$ К, а затем облучались тестовой дозой 24 mGy β -излучения изотопа Sr⁹⁰/Y⁹⁰. ТЛ измерялась с помощью фотоумножителя ФЭУ-142 на экспериментальной установке, описанной в работе [18].

Результаты и их обсуждение

Кривая ТЛ исследуемых образцов после возбуждения 50 импульсами электронов при комнатной температуре приведена на рис. 1. Видно, что на кривой наблюдается характерный для данного материала основной дозиметрический пик при 450 К (пик А). Пик В вблизи 560 К по температурному положению близок к пику ТЛ, наблюдаемому после облучения исследуемых кристаллов высокими дозами фотонного излучения, и связан с ионами хрома [19]. На кривой ТЛ имеются также пики С при 700 К и D при 830 К, обусловленные глубокими центрами захвата. Температурный диапазон пика С приблизительно совпадает с пиком ТЛ, проявляющимся

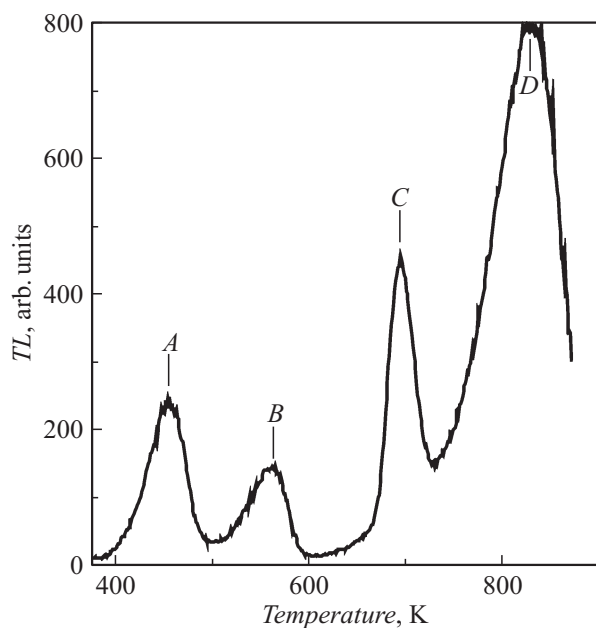


Рис. 1. Кривая ТЛ анион-дефектных монокристаллов оксида алюминия после облучения 50 импульсами пучка электронов. Скорость нагрева 2 K/s.

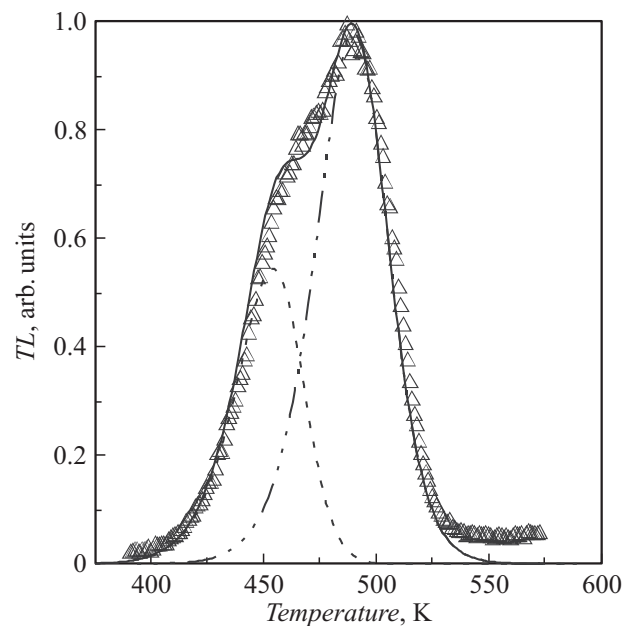


Рис. 2. Кривая ТЛ дозиметрического пика после облучения тестовой дозой β -источника образца с заполненными глубокими ловушками. Символы — эксперимент, сплошная линия — результат аппроксимации, штрих-пунктирными линиями показаны графики составляющих кривую элементарных пиков ТЛ.

после УФ-облучения при повышенной температуре [4], однако имеет меньшую полуширину. Пик D аналогичен максимуму, возникающему в результате возбуждения образцов рентгеновским излучением [14]. Пики А–D присутствовали во всех исследуемых образцах, изменялось лишь соотношение их интенсивностей. Кроме того, в ряде образцов регистрировались также пики ТЛ при 400 и 510 К, близкие по температурному положению наблюдаемым в работе [12] и предположительно связанные с ионами Ti³⁺.

Для изучения влияния заполнения глубоких ловушек на ТЛ дозиметрического пика при 450 К образцы после электронного облучения 50 импульсами нагревались до 600 К для опустошения ловушек, ответственных за дозиметрический пик, а затем облучались тестовой дозой β -источника и вновь нагревались до 600 К. Кривые ТЛ в диапазоне температур основного пика при заполненных глубоких ловушках отличались по своим параметрам от исходных. Наблюдалось уширение пика и смещение его в высокотемпературную область. При этом дозиметрический пик ТЛ имел сложную структуру, обусловленную перекрытием двух элементарных пиков, и не описывался кинетическим уравнением для моноэнергетической ловушки ТЛ. На рис. 2 приведены кривая ТЛ и результат ее разложения на элементарные пики, описываемые уравнением общего порядка кинетики [20] с учетом температурного тушения люминесценции в виде множителя Мотта [21]. Видно, что при заполненных глубоких ловушках наряду с пиком ТЛ при 450 К в структуре кривой ТЛ формируется дополнительный

пик при 490 К. Кинетические параметры ТЛ (энергия активации E , частотный фактор S , порядок кинетики b), определенные в результате разложения, составили: $E = 1.34 \text{ eV}$, $S = 1 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$, $b = 1.3$ для низкотемпературной составляющей и $E = 1.65 \text{ eV}$, $S = 9 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, $b = 1.8$ для высокотемпературной. У всех исследованных образцов присутствовали две составляющие с параметрами ТЛ, близкими к полученным для кривой на рис. 2. При этом изменялось соотношение интенсивностей пиков ТЛ в температурном диапазоне дозиметрического максимума ТЛ. Кроме того, было установлено, что интенсивность дозиметрического пика ТЛ после облучения тестовой дозой β -источника возрастала в 2–3 раза в образцах с заполненными глубокими ловушками по сравнению с исходным уровнем.

Для исследования раздельного влияния глубоких ловушек различной термической глубины на основной дозиметрический параметр исследуемых кристаллов — чувствительность к излучению — нами была изучена зависимость интенсивности основного пика ТЛ от температуры отжига после облучения тестовой дозой β -источника. В диапазоне температур 623–873 К образцы отжигались непосредственно в экспериментальной установке путем линейного нагрева со скоростью 2 К/с. Отжиг образцов при более высоких температурах проводился в муфельной печи в течение 5 мин. Для исследований были выбраны образцы, характеризующиеся узким дозиметрическим пиком ТЛ (полуширина 39 К) до заполнения глубоких ловушек. Установлено, что у таких образцов дозиметрический пик имеет электронную природу [22]. Результаты влияния температуры отжига на интенсивность ТЛ приведены на рис. 3 (кривая 1). На этом рисунке уровень интенсивности ТЛ,

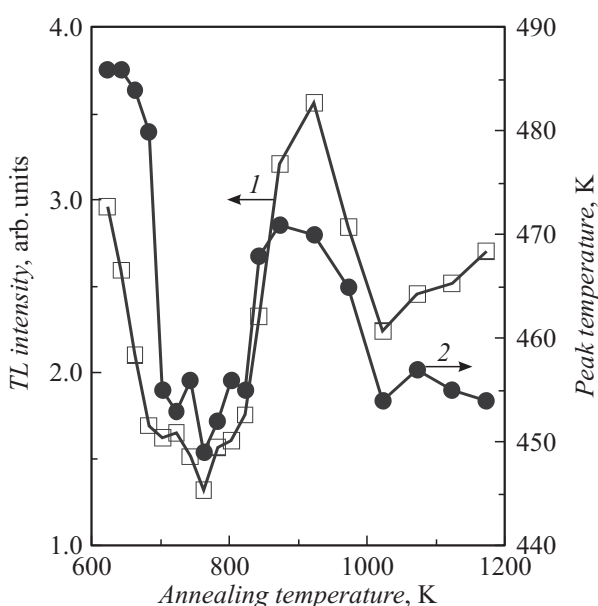


Рис. 3. Зависимость интенсивности ТЛ дозиметрического пика (1) и его температурного положения (2) от температуры отжига.

равный единице, соответствует чувствительности ТЛ до заполнения глубоких ловушек. Видно, что зависимость чувствительности ТЛ от температуры отжига имеет сложный характер с чередующимися участками спада и роста. Кроме того, изменение интенсивности пика ТЛ коррелирует с вариацией его температурного положения (кривая 2). При этом уменьшение чувствительности сопровождается сдвигом положения дозиметрического максимума в более низкотемпературную область. Противоположный результат наблюдался при увеличении чувствительности.

Эффекты изменения чувствительности образцов могут быть обусловлены конкурирующим влиянием глубоких ловушек, способных захватывать носители разного знака. При этом падение чувствительности в диапазонах 600–750 и 900–1000 К может быть связано с опустошением в указанных интервалах температур глубоких электронных ловушек, которое приводит к увеличению вероятности конкурирующего захвата ими электронов и уменьшению числа актов излучательной рекомбинации на центрах свечения. Эти процессы вызывают уменьшение интенсивности ТЛ в основном пике. Напротив, рост интенсивности ТЛ при отжиге может быть вызван опустошением глубоких дырочных ловушек. Во время измерения ТЛ дозиметрического пика дырки на этих ловушках захватывают делокализованные электроны с последующей рекомбинацией. Уменьшение заселенности дырками этих ловушек при отжиге снижает вероятность такого захвата, что увеличивает число актов рекомбинации на центрах свечения и приводит к росту чувствительности ТЛ кристаллов к облучению.

Учитывая приведенные рассуждения, можно предположить, что в диапазоне температур 600–750 К, соответствующем пику C на рис. 1, опустошаются электронные ловушки, а при температурах 780–900 К (пик D) — дырочные. Эти результаты согласуются с данными работ [7,10,14].

Наличие спадающего участка при отжиге 900–1000 К может свидетельствовать о существовании в этом температурном диапазоне еще одной глубокой ловушки, имеющей электронную природу. Этот температурный диапазон близок к температуре высвечивания пика при 880 К [4], возбуждаемого УФ-излучением и связанного, по нашему мнению, с электронным центром захвата [10]. Наконец, рост ТЛ чувствительности ТЛ при температурах свыше 1000 К может означать присутствие еще более глубокой дырочной ловушки.

С целью проверки предположения о дырочной природе этих глубоких центров исследовалась зависимость чувствительности ТЛ от времени отжига при температуре 1173 К, которая являлась максимально возможной в наших условиях эксперимента. Отжиг проводился с длительностью 5–90 мин. После каждых 5 мин нагрева образец облучался тестовой дозой β -источника, и измерялась интенсивность дозиметрического пика ТЛ. Глубокие ловушки были предварительно заполнены. Результат приведен на рис. 4. Видно, что начальный участок

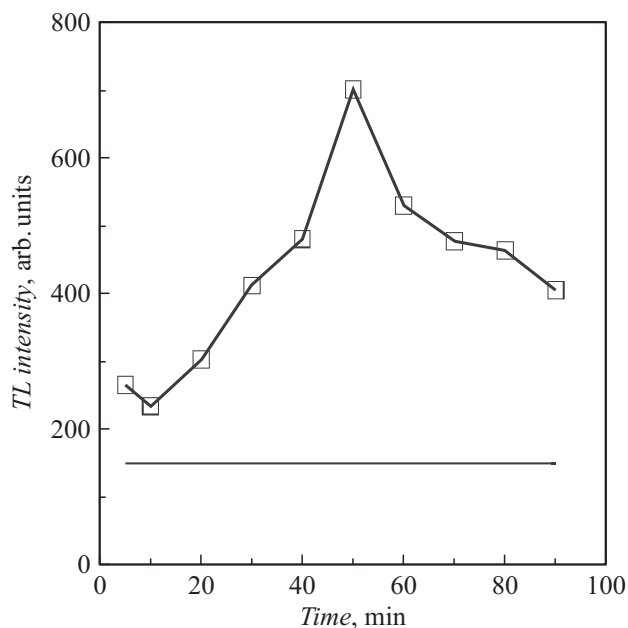


Рис. 4. Зависимость интенсивности ТЛ дозиметрического пика от времени изотермического отжига при температуре 1173 К. Горизонтальная линия соответствует значению чувствительности ТЛ образца до заполнения глубоких ловушек.

кривой характеризуется ростом чувствительности к облучению исследуемых образцов, что, как было отмечено выше, обусловлено опустошением дырочных глубоких ловушек. Дальнейший отжиг приводит к уменьшению чувствительности образцов. Обращает на себя внимание тот факт, что за время отжига, равное 90 min, чувствительность ТЛ не возвращается к исходному уровню, существовавшему до заполнения глубоких ловушек. Это может быть связано с существованием еще более глубоких электронных центров захвата, опустошающихся при температурах выше 1173 К.

Предположение о дырочной природе глубоких ловушек, опустошаемых при температурах более 1000–1070 К, уже высказывалось в работе [7]. Вместе с тем, такая интерпретация противоречит результатам работ [3,6,13], где данные ловушки рассматривались как электронные. Для более достоверного понимания природы данных центров требуются дополнительные исследования, включающие анализ изменения зарядового состояния кислородных вакансий путем измерения интенсивностей полос оптического поглощения F- и F⁺-центров.

Дополнительную информацию о влиянии глубоких ловушек на ТЛ основного пика дает анализ динамики изменения структуры кривых ТЛ в зависимости от температуры отжига исследуемых образцов. ТЛ дозиметрического пика при этом возбуждалась тестовой дозой β-источника. Полученные результаты для различных диапазонов температур приведены на рис. 5. Видно (рис. 5, *a*), что наблюдающееся при отжиге в темпе-

ратурном интервале $T = 623\text{--}763\text{ К}$ падение интенсивности ТЛ сопровождается изменением формы кривой. Если интенсивность низкотемпературной составляющей пика ТЛ практически не изменяется, то величина высокотемпературной части пика существенно уменьшается. В частности, это приводит к сдвигу температуры максимума кривой в область более низких температур, как это уже обсуждалось выше (рис. 3). При температурах отжига 763–923 К (рис. 5, *b*) наблюдается иная ситуация: растут интенсивности ТЛ обеих составляющих, при этом более сильное изменение наблюдается у высокотемпературной части пика. Наконец, в диапазоне температур отжига 923–1173 К (рис. 5, *c*) интенсивность ТЛ снижается, высокотемпературная составляющая пика практически исчезает, кривая ТЛ становится элементарной и принимает форму, близкую ТЛ исходных образцов. Однонаправленное изменение интенсивностей ТЛ обоих пиков, составляющих сложный дозиметрический пик, показывает, что для центров, ответственных за эти пики в образцах с заполненными глубокими ловушками, реализуются идентичные механизмы конкуренции с глубокими ловушками одного вида. При этом более

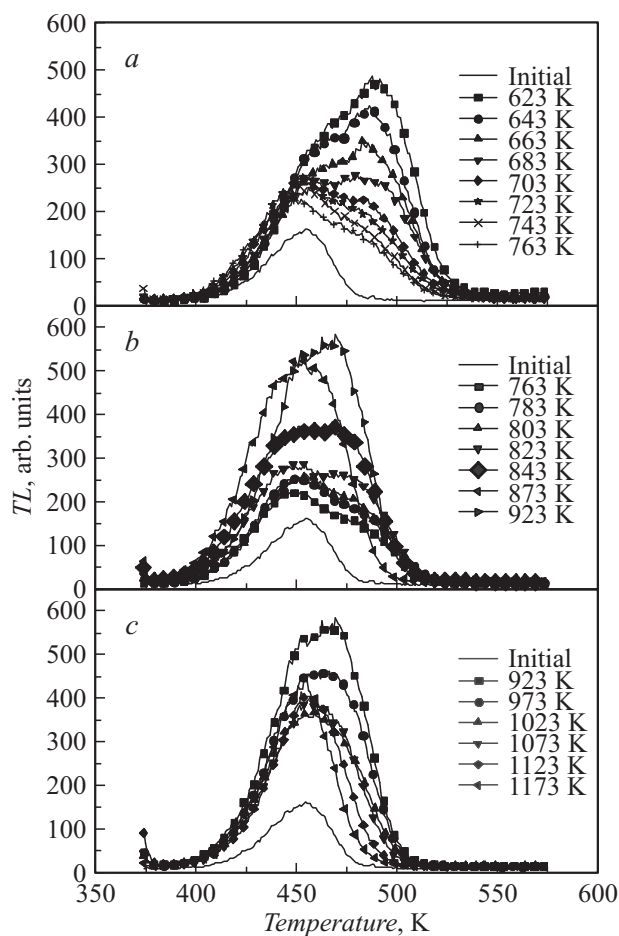


Рис. 5. Кривые ТЛ дозиметрического пика в образцах с заполненными глубокими ловушками в зависимости от температуры ступенчатого отжига в диапазонах: *a* — 623–763, *b* — 763–923, *c* — 923–1173 К.

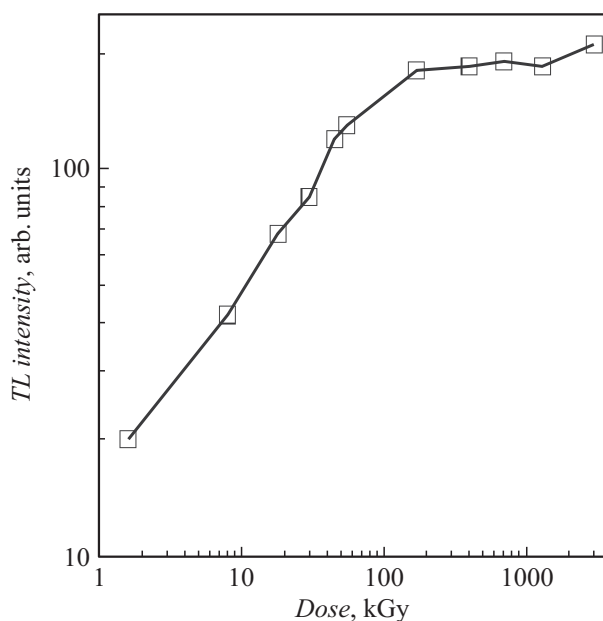


Рис. 6. Зависимость интенсивности пика ТЛ при 700 К от дозы облучения импульсным электронным пучком.

существенной является конкурирующее взаимодействие с участием ловушки, ответственной за высокотемпературную составляющую ТЛ дозиметрического пика.

Для практических целей важным является исследование зависимости интенсивности пиков ТЛ с глубоких ловушек от дозы облучения электронным пучком. Как показали наши исследования, использование для дозиметрических измерений основного пика при 450 К невозможно вследствие его быстрого насыщения. На рис. 6 приведена дозовая зависимость интенсивности пика ТЛ глубокой ловушки при 700 К (пик С на рис. 1). Видно, что исследуемая зависимость практически линейна в диапазоне доз 1.5–200 кГу. Полученный результат показывает возможность использования ТЛ с глубоких ловушек для высокодозной дозиметрии импульсных электронных пучков с помощью детекторов ТЛД-500 К на основе анион-дефектных монокристаллов оксида алюминия.

Заключение

1. Исследована ТЛ анион-дефектных монокристаллов оксида алюминия при облучении сильноточным импульсным электронным пучком. Выявлены пики ТЛ при 700 и 830 К, связанные с глубокими центрами захвата.

2. Изучена ТЛ дозиметрического пика при 450 К, возбуждаемого тестовой дозой β -источника, в образцах с заполненными глубокими ловушками. Заселение глубоких центров приводит к увеличению чувствительности ТЛ образцов и усложнению формы пика.

3. Обнаружен сложный характер зависимости изменения чувствительности ТЛ от температуры отжига облученных электронами кристаллов с чередованием участков спада и роста. Высказано предположение, что в диапазонах температур 600–750 и 900–1000 К опустошаются преимущественно электронные ловушки, а при $T = 780$ –900 и свыше 1000 К — дырочные. Полученные результаты в целом согласуются с данными других авторов, которые использовали иные способы заполнения глубоких центров.

4. Установлено, что заселенность глубоких ловушек различной природы и термической глубины влияет на структуру дозиметрического пика ТЛ, что может свидетельствовать о различиях в конкурирующем взаимодействии центров захвата дозиметрического пика ТЛ с глубокими ловушками.

5. Наличие достаточно протяженного линейного участка дозовой зависимости (до 200 кГу) интенсивности ТЛ глубокой ловушки при 700 К показывает, что детекторы ТЛД-500 К на основе анион-дефектных монокристаллов оксида алюминия могут быть использованы для высокодозной дозиметрии импульсных электронных пучков.

Список литературы

- [1] Akselrod M.S., Kortov V.S., Kravetsky D.J., Gotlib V.I. // Radiat. Prot. Dosim. 1990. Vol. 32. P. 15–20.
- [2] Akselrod M.S., Lucas A.C., Polf J.C., McKeever S.W.S. // Radiat. Meas. 1998. Vol. 29. P. 391–399.
- [3] Akselrod M.S., Gorelova E.A. // Nucl. Tracks Radiat. Meas. 1993. Vol. 21. P. 143–146.
- [4] Мильман И.И., Кортвов В.С., Никифоров С.В. // ФТТ. 1998. Т. 40. Вып. 2. С. 229–234.
- [5] Kortov V.S., Milman I.I., Nikiforov S.V. // Rad. Prot. Dosim. 1999. Vol. 84. N 1–4. P. 35–38.
- [6] Yukihiro E.G., Whitley V.H., Polf J.C., Klein D.M., McKeever S.W.S., Akselrod A.E., Akselrod M.S. // Radiat. Meas. 2003. Vol. 37. P. 627–638.
- [7] Nikiforov S.V., Kortov V.S. // Radiat. Meas. 2010. Vol. 45. P. 527–529.
- [8] Nikiforov S.V., Milman I.I., Kortov V.S. // Radiat. Meas. 2001. Vol. 33. P. 547–551.
- [9] Кортвов В.С., Мильман И.И., Никифоров С.В., Моисейкин Е.В. // ФТТ. 2006. Т. 48. Вып. 3. С. 421–426.
- [10] Kortov V.S., Milman I.I., Nikiforov S.V. // Radiat. Prot. Dosim. 2002. Vol. 100. P. 75–78.
- [11] Кортвов В.И., Мильман И.И., Никифоров С.В. Способ обработки вещества твердотельного детектора ионизирующих излучений на основе оксида алюминия. Патент РФ № 2229145. Приоритет от 03.02.2003.
- [12] Milman I.I., Moiseykin E.V., Nikiforov S.V., Mikhailov S.G., Solomonov V.I. // Radiat. Meas. 2004. Vol. 38. P. 443–446.
- [13] Yukihiro E.G., Whitley V.H., McKeever S.W.S., Akselrod A.E., Akselrod M.S. // Radiat. Meas. 2004. Vol. 38. P. 317–330.
- [14] Мильман И.И., Моисейкин Е.В., Никифоров С.В., Соловьев С.В., Ревков И.Г., Литовченко Е.Н. // ФТТ. 2008. Т. 50. Вып. 11. С. 1991–1995.

- [15] *Weinstein I.A., Pelenev V.E., Kortov V.S., Orozbek Askar.* // Phys. Stat. Sol. C. 2005. Vol. 2. N 1. P. 523–526.
- [16] *Soni A., Mishra D.R., Bhatt B.C., Gupta S.K., Rawat N.S., Kulkarni M.S., Sharma D.N.* // Radiat. Meas. 2012. Vol. 47. P. 111–120.
- [17] *Афанасьев В.Н., Бычков В.Б., Ларцев В.Д., Пудов В.П., Соломонов В.И., Шунайлов С.А., Генералова В.В., Громов А.А.* // ПТЭ. 2005. № 5. С. 88–92.
- [18] *Мильман И.И., Никифоров С.В., Кортвов В.С., Кильметов А.К.* // Дефектоскопия. 1996. № 11. С. 64–70.
- [19] *Бессонова Т.С., Станиславский М.П., Хаимов-Мальков В.Я.* // Изв. АН СССР. Сер. Неорг. материалы. 1980. Т. 16. № 11. С. 1961–1965.
- [20] *Chen R., McKeever S.W.S.* Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena. Singapore: World Scientific, 1997. 560 p.
- [21] *Мильман И.И., Кортвов В.С., Курна В.И.* // ФТТ. 1995. Т. 37. Вып. 4. С. 1149–1159.
- [22] *Akselrod A.E., Akselrod M.S.* // Radiat. Prot. Dosim. 2002. Vol. 100. N 1–4. P. 217–220.