

ВЗАИМОСВЯЗЬ СВЕЧЕНИЯ 3.8 ЭВ ДОЗИМЕТРИЧЕСКИХ И ГЛУБОКИХ ЛОВУШЕК В КРИСТАЛЛАХ АНИОН-ДЕФЕКТНОГО ОКСИДА АЛЮМИНИЯ

Введение

Термолюминесцентные свойства анион-дефектных монокристаллов оксида алюминия интенсивно исследуются в связи с их применением для дозиметрии ионизирующих излучений. Однако до сих пор остаются недостаточно изученными природа активных центров и механизм термолюминесценции (ТЛ) в дозиметрическом пике при 450 К.

Известно, что в пределах этого пика наблюдается в основном свечение F - центров – кислородных вакансий с двумя захваченными электронами, а также ряд особенностей ТЛ: зависимость интенсивности свечения F - центров (420 нм) от скорости нагрева, падение величины средней энергии активации, выявляемое с помощью метода фракционного нагрева, сверхлинейность дозовой характеристики [1, 2]. Существенным прогрессом явилось установление роли в указанных процессах глубоких центров захвата, термоионизация которых происходит при 730 К и 880 К. Состояние заселенности глубоких ловушек прямо связано с отмеченными выше особенностями, поскольку оно определяет конкуренцию в захвате носителей зарядов на ловушки, ответственные за дозиметрический пик. Имеются также сведения, что этот пик неэлементарный и различные механизмы люминесценции могут реализовываться в его температурном диапазоне.

Известно также, что в спектре ТЛ дозиметрического пика присутствует компонент 330 нм, обусловленный свечением F+ - центров (кислородных вакансий с одним захваченным электроном). Концентрацию F+ - центров можно изменять, возбуждая исследуемые кристаллы УФ светом в полосе поглощения F-центров (210 нм). При этом происходит конверсия F → F+ центров, и образовавшиеся свободные электроны заполняют ловушки, в том числе глубокие [3].

Целью данной работы является исследование корреляции интенсивности свечения 3.8 эВ дозиметрических и глубоких ловушек.

Методика и результаты исследования.

Исследовалось поведение полосы 3.8 эВ в спектре ТЛ монокристаллов оксида алюминия при УФ возбуждении образцов излучением дейтериевой лампы ДДС-30, нефильтрованный свет от которой фокусировался на образец при помощи кварцевой линзы, прозрачной в диапазоне поглощения F-центров.

Кристаллы облучались β -источником $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ тестовой дозой 50 мГр. Кривые ТЛ регистрировались в интервале температур 300-750 К. Сначала измерялась ТЛ - чувствительность образцов в исходном состоянии (без предварительного фотовозбуждения). Из рисунка 1 (кривая 1) видно, что после воздействия тестовой дозой свечение в полосе 3.8 эВ практически не наблюдается.

Затем монокристалл оксида алюминия подвергли УФ возбуждению при температуре 650 К в течение 15 минут и снова измерили ТЛ-чувствительность образца. На рисунке 1 (кривая 3) видно, что ТЛ в полосе 3.8 эВ в диапазоне дозиметрического пика значительно выросла. Вместе с тем в области температур выше 600 К наблюдается начало еще одного

интенсивного ТЛ сигнала, который соответствует известному пику при 730 К (первая глубокая ловушка).

Для проверки корреляции основного ТЛ сигнала в пике 450 К с ТЛ пиком при 730 К использовали процедуру постепенного термовысвечивания. Образец облучали тестовой дозой от β -источника, нагревали до 693 К и при этой температуре удерживали в течение одной минуты. При выбранной температуре и длительности УФ возбуждения наблюдалось свечение 3.8 эВ, практически стационарное по интенсивности. В то же время за одну минуту глубокая ловушка не успевала полностью высветиться, что обеспечивало многократность цикла измерений. Затем процедура измерения (облучение и нагрев) повторялась снова.

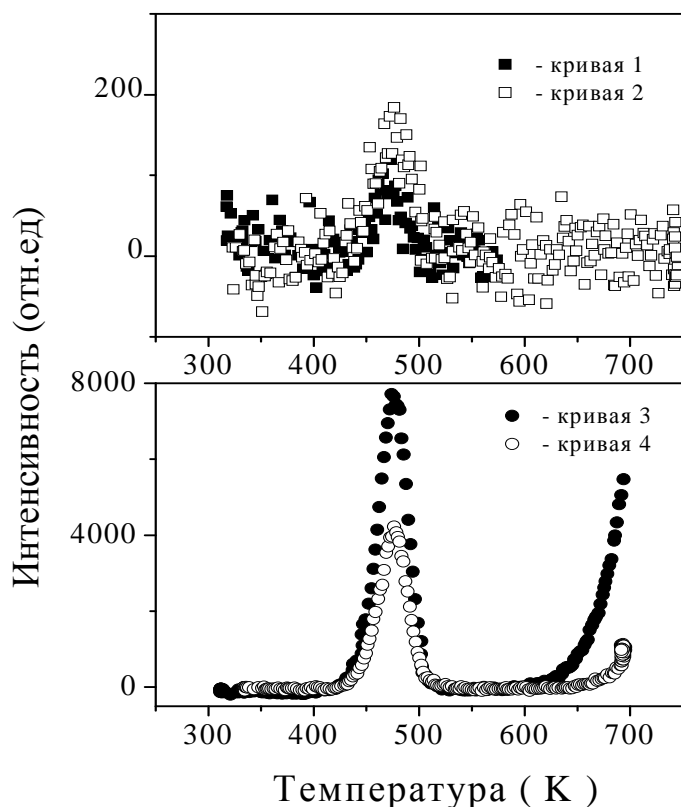


Рис. 1. Кривые ТЛ (в полосе 3.8 эВ) оксида алюминия в различных состояниях (кривая 1 – исходный, кривая 2 – после полного опустошения глубокой ловушки при 730 К, кривая 3 – после возбуждения УФ светом, кривая 4 – после частичного опустошения ловушки при 730 К).

В результате каждого описанного измерения интенсивность ТЛ сигнала при $T=693$ К уменьшалась (см. рисунок 1, кривая 4). Процедуру продолжали до тех пор, пока эта интенсивность не стала сравнима с фоном. После этого образец нагрели до 920 К и снова измерили ТЛ в полосе 3.8 эВ. Из рисунка 1, (кривая 2) видно, что в этом состоянии образца, как и в исходном, дозиметрический пик едва заметен, а пик ТЛ при 730 К не регистрируется.

На рисунке 2 приведены зависимости светосуммы основного дозиметрического пика (кривая 1) в полосе свечения 3.8 эВ и интенсивности ТЛ при $T=693$ К (кривая 2) от времени постепенного опустошения глубокой ловушки (730 К) при температуре 693 К. Естественно, что I_{693} падает при увеличении времени опустошения глубоких ловушек при 730 К. В то же время обнаружилась, что аналогичным образом уменьшается отклик образца на приложенную дозу (кривая 1). Таким образом, установлена прямая корреляция этих двух процессов. Небольшие отклонения при времени термовысвечивания ≥ 6 минут могут быть связаны с накоплением влияния, которое оказывает прикладываемая доза перед измерением ТЛ-отклика. Дело в том, что в результате β -облучения ловушка 730 К

может частично заполняться. Однако в силу малости тестовой дозы можно пренебречь этим процессом.

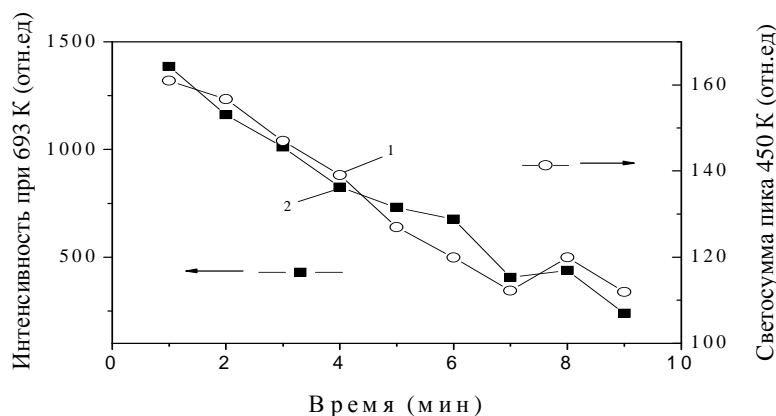


Рис. 2. ТЛ-выход при 450 К (1) и 693 К (2) в полосе 3.8 эВ.

Отметим также, что установленная корреляция хорошо согласуется с предполагаемым дырочным механизмом исследуемого свечения при 3.8 эВ [2] и дырочной природой глубокой ловушки 730 К [1, 2]. При нагреве выше 600 К освобожденные дырки захватываются F-центрами с образованием возбужденного состояния F^+ -центра. В результате наблюдается свечение при 3.8 эВ в температурном диапазоне пика с максимумом при 730 К. По мере ступенчатого высвечивания ТЛ этого пика уменьшается общее количество F^+ -центров, созданных в результате $F \rightarrow F^+$ конверсии при УФ возбуждении образца. В итоге синхронно уменьшается интенсивность свечения в полосе 3.8 эВ в температурном диапазоне дозиметрического пика.

После возбуждения кристаллов оксида алюминия монохроматическим УФ светом, ТЛ дозиметрического пика в полосе свечения 3.8 эВ описывается кинетикой первого порядка. При этом было исследованы образцы полуширина, которых не превышала 35 К. Однако дополнительные исследования по аналогичной методике показали, что кинетические параметры могут изменяться от образца к образцу.

Исследовались образцы приблизительно с одинаковой чувствительностью к возбуждению и с КТВ, отличающимися друг от друга значениями величин полуширины пика и температурного положения. Типичные кривые термовысвечивания для образцов первой ($T_m \approx 456$ К, $W \approx 30$ К) и второй ($T_m \approx 492$ К, $W \approx 46$ К) группы, облученных тестовой дозой β -излучения 0.064 Гр и измеренных при линейном нагреве со скоростью 2 К/с, приведены на рисунке 3, рассчитанные кинетические параметры приведены в таблицах 1 и 2.

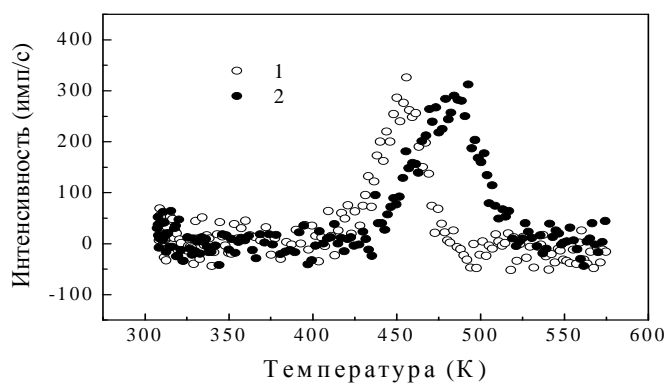


Рис. 3. Кривые термовысвечивания монокристаллов оксида алюминия первой (1) и второй (2) группы.

Из таблиц 1 и 2 видно, что у образцов с различной полушириной ТЛ пика порядок

кинетики различается. Значения энергии активации и частотного фактора относительно низкие.

Таблица 1

Параметры кинетики затухания ТЛ в полосе свечения 3.8 эВ для образцов первой группы (узкий пик)

$t_{\text{возб}}$, (мин)	Мономолекулярная кинетика		Общий порядок кинетики		
	$E \pm 0.1$, (эВ)	$S \pm 10$, (с^{-1})	$b \pm 0.1$	$E \pm 0.1$, (эВ)	$S'' \pm 10$, (с^{-1})
8	0.82	$1.1 \cdot 10^8$	1.10	0.84	$2.0 \cdot 10^8$
10	0.98	$6.0 \cdot 10^9$	1.04	1.01	$1.3 \cdot 10^{10}$
13	0.85	$2.2 \cdot 10^8$	0.99	0.93	$1.3 \cdot 10^9$

Таблица 2

Параметры кинетики затухания ТЛ в полосе свечения 3.8 эВ для образцов второй группы (широкий пик)

$t_{\text{возб}}$, (мин)	Общий порядок кинетики		
	$b \pm 0.1$	$E \pm 0.1$, (эВ)	$S'' \pm 10$, (с^{-1})
8	1.31	0.90	$2.9 \cdot 10^8$
10	1.33	0.82	$5.8 \cdot 10^6$

Таким образом, в настоящей работе многократно подтвердилось предположение о том, что свечение 3.8 эВ в спектре ТЛ анион-дефектного оксида алюминия тесно связано с состоянием глубоких ловушек, ответственных за пик в области 730 К. Наблюдаемая корреляция позволяет делать выводы о состоянии глубокой ловушки 730 К по интенсивности свечения 3.8 эВ в основном дозиметрическом пике. Отметим, что при одновременной регистрации свечения в полосах F- и F⁺-центрах ТЛ информация о поглощенной дозе может быть искажена за счет влияния неконтролируемой заселенности глубоких ловушек.

Литература:

1. Akselrod, M. S. Deep Traps in High Sensitive $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$:C TLD Crystals / M. S. Akselrod, E. A. Gorelova // Nucl. Tracks Radiat. Meas. 1993. V.21, P. 143-146.
2. The effects of deep trap population on the thermoluminescence of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$:C / E.G. Yukihiro, V.H. Whitley, D.M. Klein et al. // Radiat.Meas. 2003. 37, P. 627.
3. Кортков В.С. Особенности кинетики термостимулированной люминесценции кристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ с дефектами / В.С.Кортков, И.И.Мильман, С.В.Никифоров // ФТТ. 1997. Т. 39, № 9. С. 1538-1543.