

Роль глубоких ловушек в люминесценции анион-дефектных кристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$

© И.И. Мильман, Е.В. Моисейкин, С.В. Никифоров, С.В. Соловьев,
И.Г. Ревков, Е.Н. Литовченко

Уральский государственный технический университет (УПИ),
620002 Екатеринбург, Россия

E-mail: Igor.Milman@dpt.ustu.ru

(Поступила в Редакцию 27 сентября 2007 г.)

Представлены результаты исследования глубоких ловушек, ответственных за термостимулированную люминесценцию при температурах около 703, 778, 830 и 903 К в монокристаллах анион-дефектного корунда $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$. Изучено влияние состояний заселенности этих ловушек носителями заряда обоих знаков на чувствительность к излучению основного термолюминесцентного пика при 450 К, оптически стимулированной люминесценции и фототрансферной термолюминесценции. Полученные результаты обсуждаются в рамках модели механизма интерактивного взаимодействия ловушек различной глубины.

PACS: 78.60.Kn, 78.60.-b, 61.72.-y, 87.57.uq

1. Введение

Интерес к глубоким ловушкам в дозиметрических кристаллах $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ связан с существенным их влиянием на параметры основного термолюминесцентного (ТЛ) пика при 450 К. В зависимости от степени заполнения, природы ловушек (как правило, неизвестной), вида и дозы облучения наблюдаются изменения в температурном положении, чувствительности и форме пика, появление нелинейной связи между выходом ТЛ и дозой облучения [1–7]. Изучение роли глубоких ловушек в люминесценции этих кристаллов представляет самостоятельный интерес для новых направлений в твердотельной дозиметрии ионизирующих излучений и нейтронов. Эти направления основаны на явлениях фотостимулированного переноса носителей заряда с глубоких ловушек на более мелкие — фототрансферная ТЛ (ФТТЛ) [8,9] — и оптически стимулированного опустошения ловушек, ответственных за основной пик при 450 К, сопровождающегося люминесценцией, — оптически стимулированная люминесценция (ОСЛ) [10,11].

В цикле работ [1–7] приведены экспериментальные и теоретические результаты, иллюстрирующие влияние глубоких ловушек на люминесцентные свойства анион-дефектных монокристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$. Разработанная по данным этих результатов интерактивная модель основана на механизме конкурирующего в захвате носителей зарядов взаимодействия мелких и глубоких ловушек. Эта модель позволила с единых позиций описать совокупность основных экспериментально наблюдаемых особенностей ТЛ-свойств анион-дефектных кристаллов корунда: зависимость выхода ТЛ и степени нелинейности дозовой характеристики от скорости нагрева кристаллов при считывании, тушение фото- и радиолюминесценции F -центров, падение средней энергии активации в пределах основного пика, не следующее из известных моделей кинетики ТЛ.

Недостатком описанной модели является то, что в ней рассматривается только один тип глубоких ловушек, захватывающих заряды того же знака (электроны), что и ловушки, ответственные за основной пик при 450 К. Источником электронов в этом случае служили заряды, освобожденные при высвечивании пика ТЛ при 450 К или образованные в результате фотоионизации F -центров излучением ртутной лампы, энергия квантов которого недостаточна для возбуждения носителей по типу зона–зона (ширина запрещенной зоны $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ около 9 eV), но достаточна для эффективной ионизации F -центров: $F + h\nu = F^+ + e$, где F — нейтральный центр (кислородная вакансия с двумя захваченными электронами), $h\nu$ — энергия оптического кванта, F^+ — положительно заряженный центр (кислородная вакансия с одним захваченным электроном), e — свободный электрон. На практике при облучении кристаллов рентгеновским или гамма-излучением наряду с электронами образуются дырки, которые также могут быть захвачены глубокими дырочными ловушками и оказывать влияние на люминесценцию кристаллов, однако эта возможность в исследуемых кристаллах изучена относительно слабо. Более того, в литературе отсутствуют сведения об электронной или дырочной природе конкретных глубоких ловушек, указываются только температурные диапазоны их опустошения. Так, например, наблюдаемые изменения чувствительности ТЛ и оптического поглощения F^+ -центров в процессе ступенчатого отжига авторы [12] связывают с конкурирующим действием опустошающихся глубоких дырочных (800–875 К) и глубоких электронных (1100–1200 К) ловушек. В работе этих и большей части цитируемых в ней авторов ТЛ измерялась от комнатной температуры до 773 К. Значительно меньше сведений имеется о непосредственном обнаружении глубоких ловушек с помощью соответствующих им ТЛ-пиков и исследованиях их связи с ТЛ-, ФТТЛ- и ОСЛ-свойствами кристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$. Следует отме-

тять, что имеющиеся в литературе сведения о высокотемпературной ТЛ в $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ относительно немногочисленны и суммированы в недавней работе [13], в которой основные усилия авторов были направлены на изучение сверхлинейности дозовой зависимости ТЛ пиков в порошкообразной форме $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ при 483, 593, 723, 778, 903 и 983 К, возбужденных излучением $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -источника при комнатной температуре.

В настоящей работе продолжено систематическое изучение интерактивной связи системы основной и глубоких ловушек.

Особенностью использованной в работе методики возбуждения высокотемпературной ТЛ являлось то, что оно производилось при температурах образцов выше температуры основного пика излучением ртутной лампы для заполнения электронных ловушек или рентгеновской трубки для заполнения электронных и дырочных ловушек. Это позволяло избирательно возбуждать ловушки определенной термической глубины и знака и раздельно изучать их влияние на ТЛ-, ФТТЛ- и ОСЛ-свойства анион-дефектных кристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$. Облучение исследуемых образцов при повышенных температурах препятствовало захвату образованных носителей заряда на основную ловушку, обладающую сечением захвата, значительно превышающим сечения захвата носителей заряда глубокими ловушками, что позволяло заселять их при существенно меньших дозовых нагрузках по сравнению с облучением при комнатной температуре.

2. Образцы и методика эксперимента

Исследовались образцы стандартных детекторов ТЛД-500К, изготовленных из анион-дефектных монокристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$. Для определения исходной чувствительности образцов возбуждение ТЛ при комнатной температуре осуществлялось с помощью излучений $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -источника, обеспечивающего тестовую мощность дозы в месте расположения образца, равную 32 мГр/мин. Для заполнения глубоких электронных и дырочных ловушек использовалось рентгеновское излучение (30 кВ, 80 мА, W-анод), а для дырочных — излучение ртутно-кварцевой лампы с фокусирующей системой и механическим затвором. При возбуждении образцов ультрафиолетовым (УФ) излучением ртутно-кварцевой лампы в течение 1 с выход ТЛ в среднем был эквивалентен дозе излучения $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -источника (около 8 мГр). Температура образцов при облучении изменялась с шагом около 5 К от комнатной до 1200 К. ТЛ измерялась по стандартной методике с помощью фотоэлектронного умножителя ФЭУ-142 с пониженной чувствительностью к тепловому излучению нагревателя. Для возбуждения ФТТЛ и ОСЛ использовался сверхъяркий светоизлучающий диод с длиной волны в максимуме излучения 470 нм. Данные ОСЛ получены интегрированием кривых затухания за 300 с.

3. Результаты и обсуждение

Возбуждение образцов УФ-излучением в течение 5 мин при температуре 573 К и последующий нагрев со скоростью 2 К/с приводили к появлению ТЛ-пиков около 703, 778 и 903 К (рис. 1, кривая 3). Пики при 703 и 778 К существенно перекрываются, причем, как было установлено, с ростом дозы интенсивность пика при 703 К возрастает гораздо быстрее, и пик при 778 К становится практически невидимым. Для его обнаружения и представления совместно с пиком при 703 К образцы облучались при 763 К, а при остывании до 573 К дополнительно освещались короткой вспышкой света. Соотношения интенсивностей пиков могли изменяться от образца к образцу, но их присутствие выявлялось во всех случаях.

Тестирование основного дозиметрического пика до и после возбуждения образцов УФ при 573 К излучением β -источника показало, что чувствительность их возрастала в 5–10 раз.

В предположении, что наблюдаемый эффект связан с заполнением глубоких конкурирующих электронных ловушек ступенчатый отжиг образцов проводился с контролем их чувствительности по основному пика ТЛ при 450 К на каждой стадии отжига. Этот результат представлен кривой 1 на рис. 1, на котором динамика возврата чувствительности к исходному значению в зависимости от температуры отжига приводится вместе с высокотемпературными пиками ТЛ и их разложением на элементарные составляющие (рис. 1, кривая 4). Данные этого рисунка показывают, что „приобретенная“ чувствительность снижается в температурном интервале

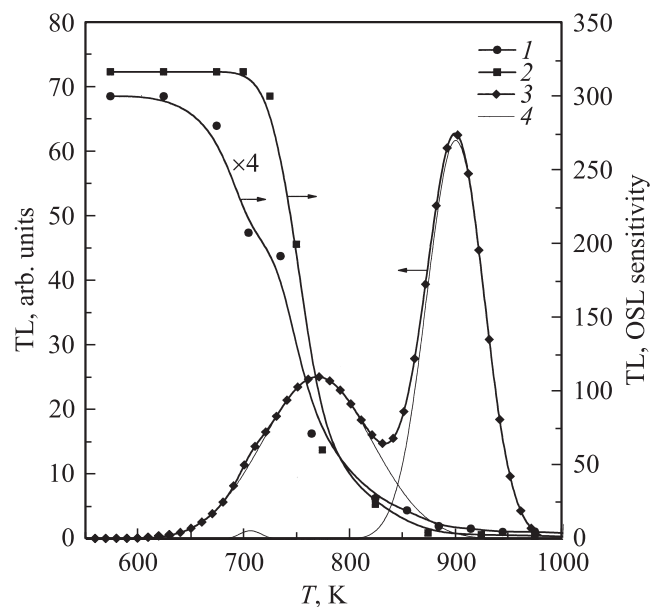


Рис. 1. Изохронный отжиг „приобретенной чувствительности“ ТЛ (1) и ОСЛ (2); ТЛ (3) и ее разложение на составляющие (4) после облучения образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ УФ-излучением при 600 К.

отжига высокотемпературных ТЛ-пиков с разной скоростью. Как видно, отжиг пика при 703 К практически не влияет на величину основного пика. Максимальный темп восстановления чувствительности к исходному состоянию наблюдается при отжиге низкотемпературной половины пика при 778 К и перекрывающейся с ним левой части пика при 903 К. Таким образом, можно сделать вывод, что в температурном интервале опустошения высокотемпературных ловушек около 778 и 903 К вновь усиливается их конкурирующее действие, и это приводит к падению „приобработанной“ чувствительности основного пика и возврату ее к исходному (до высокотемпературного возбуждения) значению. Логично заключить, что в этом случае в температурном диапазоне 780–900 К опустошаются глубокие ловушки преимущественно электронной природы, в наибольшей степени оказывающие влияние на свойства основного ТЛ-пика $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ при 450 К.

Несмотря на то что анион-дефектный корунд нашел практическое применение и является одним из лучших материалов в ОСЛ-дозиметрии, до сих пор данные по ОСЛ не связывались с состоянием глубоких ловушек в этом материале. Считается, что явление обусловлено оптически стимулированным освобождением носителей с основной ловушки, ответственной за ТЛ-пик при 450 К. Чувствительность ОСЛ $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ в несколько раз превосходит чувствительность ТЛ, спектр люминесценции принадлежит свечению F -центров (420 нм), а возбуждения — широкой полосе видимого и инфракрасного диапазонов с максимумом около 470 нм.

При изучении ОСЛ исследуемых образцов, возбужденных при высокой температуре, обнаружилось, что их чувствительность возрастала более чем на один-два порядка (рис. 1, кривая 2), а кинетика отжига „приобработанной“ чувствительности оказалась близкой с измеренной для ТЛ. Этот факт свидетельствует о том, что заполнение электронами глубоких ловушек снижает вероятность конкурирующего захвата ими освобожденных при ТЛ и ОСЛ носителей, сходным образом влияя как на ТЛ основного пика, так и на ОСЛ.

Подтверждением реальности этого механизма может служить существенный рост „приобработанной“ чувствительности ОСЛ. Этот факт может быть объяснен тем, что при оптической стимуляции часть электронов освобождается в том числе и из глубоких ловушек, принимая участие в ОСЛ. Для подтверждения этого предположения образцы с предварительно заполненными глубокими ловушками использовались в циклах однотипных измерений: облучение тестовой дозой $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -источника при комнатной температуре — регистрация ОСЛ. Полученный результат представлен на рис. 2. Видно, что с ростом числа циклов выход ОСЛ падает по мере оптически стимулированного опустошения глубоких ловушек от цикла к циклу.

Для выяснения деталей механизма такого опустошения глубоких электронных ловушек использовалась методика ФТТЛ: образцы облучались УФ-светом при

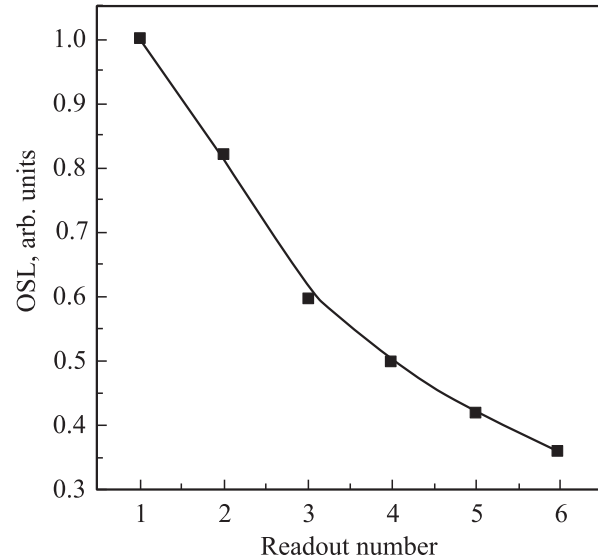


Рис. 2. Зависимость выхода ОСЛ для образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ с заполненными глубокими ловушками от числа циклов облучение–нагрев. Облучение в циклах производилось при комнатной температуре излучением $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -источника, глубокие ловушки заполнялись один раз перед началом всей серии измерений УФ-облучением кристаллов при 600 К.

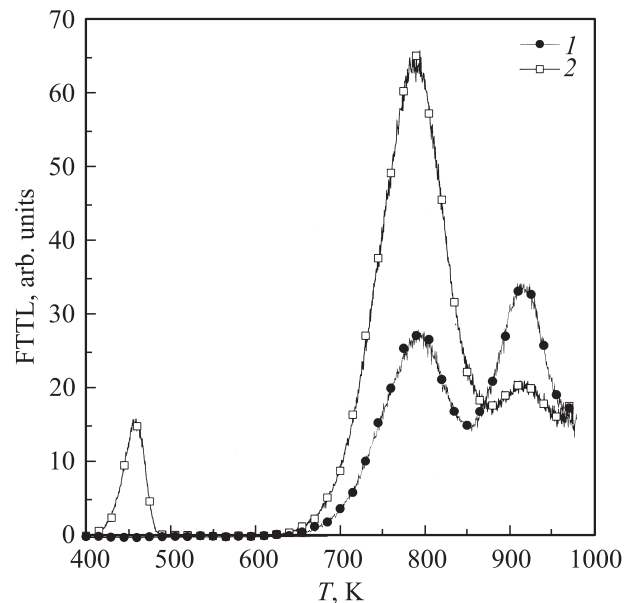


Рис. 3. ФТТЛ образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$, возбужденных при температуре около 770 К УФ-излучением, в зависимости от времени стимуляции излучением светодиода: 1 — 0, 2 — 5 мин.

температуре около 700 К в течение 2 мин. На кривой термовысвечивания в результате такого возбуждения появлялось два пика при 778 и 903 К (рис. 3, кривая 1). Воспроизводимые интенсивности этих пиков принимались за исходные, после чего образцы с заполненными глубокими ловушками освещались при комнатной температуре излучением светодиода в течение различ-

ных промежутков времени. Результаты этих измерений представлены на рис. 3 (для упрощения на рисунке приведен результат для времени освещения 5 min). Установлено, что с ростом времени экспозиции излучением светодиода пик при 903 К уменьшается, а синхронно с его падением возрастают пики при 450 и 778 К. Данные этих экспериментов подтверждают электронную природу основного пика ТЛ и пиков при 778 и 903 К. Они указывают также на то, что ловушки, ответственные за пик при 778 К, эффективно перехватывают заряды, освобожденные из ловушек, ответственных за пик при 903 К, снижая тем самым интенсивность основного пика. Дальнейшая модификация структуры исследуемого материала, связанная удалением глубоких ловушек при 778 К, позволила бы повысить эффективность практического применения ФТТЛ, используемой для высокотемпературной дозиметрии.

Качественно иные закономерности в высокотемпературной ТЛ и изменениях чувствительности основного пика наблюдались после облучения образцов рентгеновским излучением при высокой температуре. В этом случае чувствительность основного пика увеличивается только в 3–5 раз, а на кривой ТЛ появлялся новый пик при 830 К (рис. 4, кривая 1), отсутствующий при возбуждении образцов в идентичных условиях УФ-излучением. Результаты ступенчатого отжига „приобретенной чувствительности“, приведенные на рис. 5 (кривая 1), представленные вместе с кривой ТЛ (рис. 5, кривая 2), показывают существенные отличия от аналогичной зависимости, полученной после высокотемпературного облучения исследуемых образцов УФ-излучением (рис. 1, кривая 2). Как видно, плавное падение „приобретенной чувствительности“ в

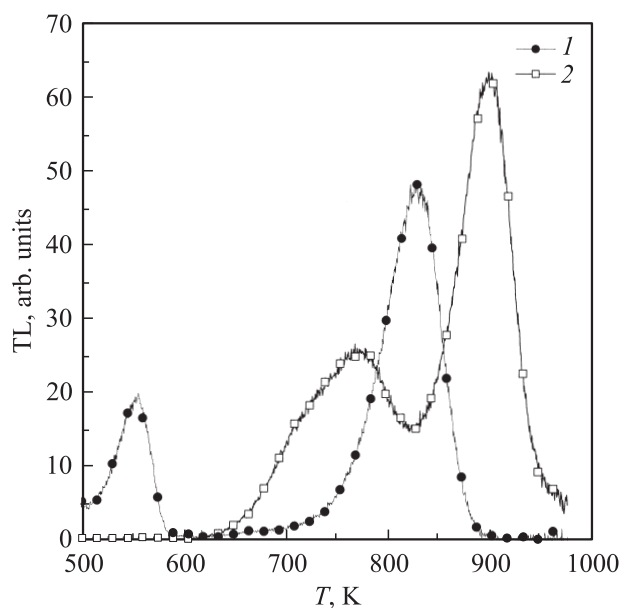


Рис. 4. ТЛ образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ с заполненными глубокими ловушками. 1 — облучение рентгеновским излучением, 2 — УФ-излучением.

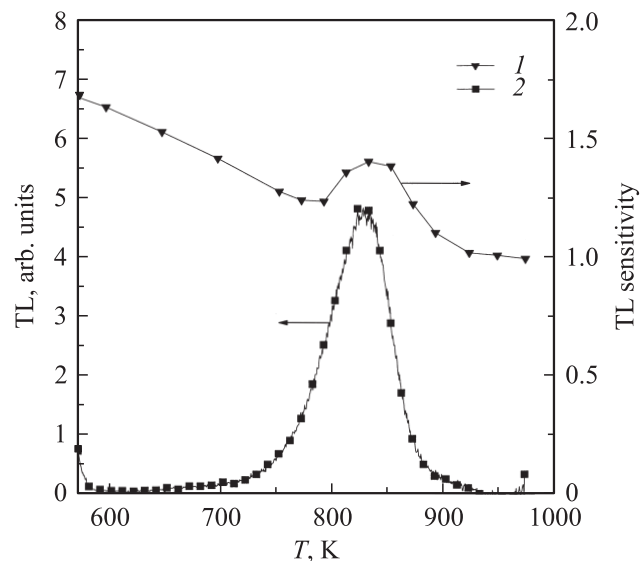


Рис. 5. Изохронный отжиг „приобретенной чувствительности“ ТЛ (1) и кривая термовысвечивания образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ (2) после высокотемпературного облучения рентгеновским излучением.

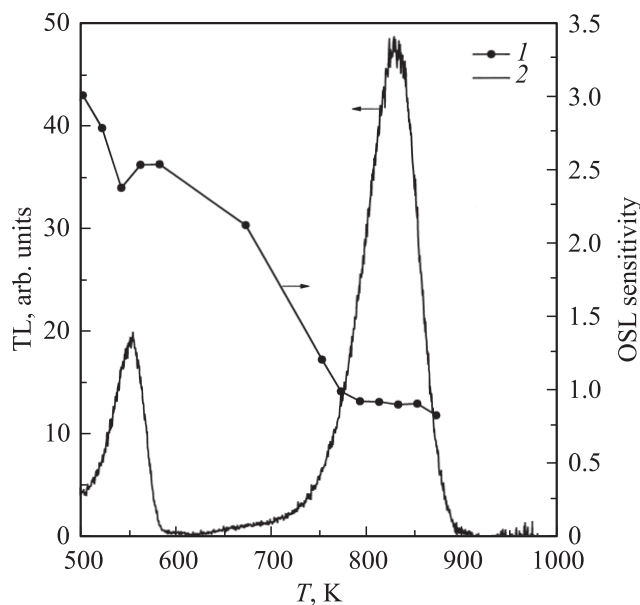


Рис. 6. Изохронный отжиг „приобретенной чувствительности“ ОСЛ (1) и кривая термовысвечивания образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ (2) после высокотемпературного облучения рентгеновским излучением.

районе ТЛ-пика, возбужденного рентгеновским излучением при высокой температуре образца, сменяется подъемом перед дальнейшим снижением и возвращением к исходному значению. Если плавное снижение „приобретенной чувствительности“ в процессе ступенчатого отжига можно объяснить опустошением непрерывно распределенных по глубине электронных ловушек, то локальное повышение чувствительности основного пика

при 450 К, сопровождающееся опустошением глубокой ловушки при 830 К, логично связать с ее дырочной природой. В заполненном состоянии такая ловушка будет играть роль центра электронно-дырочной рекомбинации, конкурируя с пустыми электронными ловушками в захвате носителей, освобожденных при 450 К, снижая чувствительность основного пика. Спектральный состав люминесценции в пике ТЛ при 830 К соответствует характерной полосе свечения F^+ -центров с максимумом около 330 нм. Поэтому возможным происхождением пика ТЛ является захват дырки F -центром с последующим его преобразованием в F^+ -центр, релаксация возбужденного состояния которого сопровождается эмиссией кванта света с длиной волны 330 нм.

Выход ОСЛ-образцов, облученных рентгеновским излучением при высокой температуре, также возрастал в 3–4 раза. Последующий ступенчатый отжиг приводил к плавному возвращению „приобретенной чувствительности“ (рис. 6, кривая 1) к исходному значению вблизи 770 К, не вызывая аномалий в проявлении пика ТЛ при 830 К.

Результаты настоящей работы могут быть полезны для понимания механизмов ТЛ, ОСЛ и ФТТЛ в анион-дефектных кристаллах $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ и дополняют модель интерактивного взаимодействия учетом ловушек дырочной природы.

Список литературы

- [1] В.С. Кортов, И.И. Мильман. Изв. вузов. Физика **11**, 145 (1996).
- [2] I.I. Milman, V.S. Kortov, S.V. Nikiforov. Rad. Measurements **29**, 401 (1998).
- [3] V.E. Pelenev, V.S. Kortov, I.I. Milman. Rad. Measurements **33**, 629 (2001).
- [4] В.С. Кортов, И.И. Мильман, С.В. Никифоров, В.Е. Пеленев. ФТТ **45**, 1202 (2003).
- [5] V.S. Kortov, I.I. Milman, S.V. Nikiforov, E.V. Moiseikin. Phys. Status Solidi C **2**, 515 (2005).
- [6] В.С. Кортов, И.И. Мильман, С.В. Никифоров, Е.В. Моисейкин. ФТТ **48**, 421 (2006).
- [7] V.S. Kortov, I.I. Milman, S.V. Nikiforov, E.V. Moiseikin, S.V. Kondrashov. Rad. Measurements **42**, 509 (2007).
- [8] В.С. Кортов, И.И. Мильман, С.В. Никифоров, Е.В. Моисейкин, М.М. Овчинников. ФТТ **46**, 12 (2004).
- [9] L.E. Colyott, M.S. Akselrod, S.W.S. McKeever. Rad. Prot. Dosim. **65**, 1–4, 263 (1996).
- [10] L. Botter-Jensen, S.W.S. McKeever, A.G. Wintle. Optically stimulated luminescence dosimetry. Elsevier, Netherlands (2003). 355 p.
- [11] И.И. Мильман, Е.В. Моисейкин. ФПС **72**, 140 (2005).
- [12] E.G. Yukihara, V.H. Whitley, J.C. Polf, D.M. Klein, S.W.S. McKeever, A.E. Akselrod, M.S. Akselrod. Rad. Measurements **37**, 627 (2003).
- [13] D. Lo, J.L. Lawless, R. Chen. Rad. Prot. Dosim. **119**, 1–4, 71 (2006).