

Фототрансферная термолюминесценция в анион-дефектных кристаллах $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$

© В.С. Кортон, И.И. Мильман, С.В. Никифоров, Е.В. Моисейкин, М.М. Овчинников

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

E-mail: snik@dpt.ustu.ru

(Поступила в Редакцию 28 апреля 2004 г.)

Представлены результаты экспериментального наблюдения в кристаллах анион-дефектного $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ процессов термически стимулированного переселения носителей заряда с центров захвата, ответственных за основной пик термолюминесценции при 450 К, на глубокую ловушку, а также оптически индуцированного переноса носителей с глубокой ловушки на основную, обеспечивающего возникновение фототрансферной термолюминесценции при 450 К. Полученные результаты служат экспериментальным подтверждением адекватности ключевых предположений в модели интерактивного взаимодействия основной и глубокой ловушек в исследуемых кристаллах и обоснования метода повторного получения дозиметрической информации.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта Министерства образования РФ и CRDF (the U.S. Civilian Research & Development Foundation for the Independent States of the Former Soviet Union), приложение 7 ЕК-005-Х1, грант для молодых кандидатов наук № Y1-EP-05-15.

С появлением кристаллов анион-дефектного $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ и высокочувствительных термолюминесцентных (ТЛ) детекторов ионизирующих излучений ТЛД-500К на их основе существенно расширились возможности персональной и аварийной дозиметрии, радиационного мониторинга окружающей среды, регистрации импульсных и низкодозовых излучений. В этой связи люминесцентные и дозиметрические свойства номинально чистых анион-дефектных монокристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ („ $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ “ в зарубежной литературе), выращенных в восстановительных условиях для создания высокой концентрации F^- и F^+ -центров, продолжают интенсивно изучаться [1–4].

Экспериментальные исследования указанных кристаллов выявили ряд особенностей, которые не следуют из известных моделей, описывающих кинетику ТЛ. Наиболее существенными из них являются зависимость выхода ТЛ от скорости нагрева кристалла, падение средней энергии активации в пределах основного пика, регистрируемого методом фракционного термовысвечивания, тушение фото- и радиолюминесценции F^- -центров в температурном интервале основного пика [5,6].

Значительным прогрессом в понимании механизмов наблюдаемых явлений явилось установление участия в них глубоких ловушек. В частности, были получены экспериментальные доказательства того, что степень их заполнения носителями прямо связана со всеми из отмеченных выше особенностей. Эти результаты интерпретированы в рамках модели интерактивной системы ловушек, основу которой составляет предположение о захвате носителей, освобождающихся в температурном интервале основного пика ТЛ, термически стабильными глубокими ловушками. Расчеты, проведенные в соответствии с такими представлениями, позволили описать всю совокупность экспериментально наблюдаемых особенностей ТЛ в этих кристаллах в зависимости от степени заселенности глубоких ловушек: форму и

температурное положение пика, влияние на выход люминесценции скорости нагрева, нелинейность дозовой зависимости, изменение чувствительности [7–12].

Однако основополагающее предположение в указанной модели о возможности захвата глубокими ловушками носителей, освобождаемых при измерении ТЛ из ловушек, ответственных за основной пик при 450 К, и температурной зависимости эффективности этого захвата, было сделано на основании косвенных наблюдений, в которых глубокие ловушки предварительно заполнялись с помощью искусственного приема, а не непосредственно в процессе регистрации ТЛ в основном пике [7–11]. Поэтому существование интерактивной связи между основной и глубокими ловушками в кристаллах анион-дефектного $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ нуждается в более детальном экспериментальном подтверждении. В этой связи серьезной поддержкой рассматриваемой модели явилось бы прямое наблюдение переселения зарядов при считывании ТЛ в основном пике на глубокую ловушку и с глубокой ловушки на ловушку, ответственную за основной пик. Получение экспериментальных доказательств реальности таких процессов и явилось целью настоящей работы.

1. Образцы и методика эксперимента

Исследовались образцы стандартных термолюминесцентных детекторов ТЛД-500К на основе номинально чистых анион-дефектных монокристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. Модельные представления и численные расчеты особенностей ТЛ именно этих кристаллов обсуждались в работах [7–12].

В настоящей работе применялось два способа заполнения носителями заряда глубокой ловушки. По первому, называемому искусственным, глубокая ловушка, свя-

занная с пиком ТЛ при 730 К, заполнялась при освещении образцов, находящихся при температуре 603 К, полным спектром излучения ртутной лампы типа ДРТ-240 в течение 2 min. При этом ловушка, ответственная за основной пик ТЛ при 450 К, оставалась незаполненной. В соответствии со вторым — естественным способом — глубокая ловушка заполнялась в процессе опустошения основной при нагреве до 620 К со скоростью 0.5, 1, 2, 5 или 10 К/с образцов, предварительно облученных при комнатной температуре стандартной дозой β -излучения $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ источника. Опустошение глубоких ловушек осуществлялось с помощью термообработки кристаллов при температуре 1170 К в течение 10 min.

Фотостимулированное переселение носителей заряда из глубокой ловушки на основную производилось с использованием источника оптического излучения с повышенной спектральной яркостью на длине волны 470 nm, состоящего из сборки 10 светоизлучающих диодов типа СДК-С469-5-10, объектива с фокусным расстоянием около 2 см, концентрирующего световой поток на площади около 2 см². ТЛ и фототрансферная термолюминесценция (ФТТЛ) в основном пике измерялись по стандартной методике со скоростью нагрева 2 К/с.

2. Результаты и обсуждение

В температурном интервале 300–900 К при скорости нагрева 2 К/с кривая термовысвечивания аниондефектного $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ содержит 4 ТЛ пика: 323, 450, 730 и 880 К. Пик при 323 К мало изучен, его величина зависит от времени между окончанием облучения и измерением. Пик при 450 К называют основным или дозиметрическим, поскольку в обычных измерениях именно в этом пике запасается большая часть светосуммы. Пик при 730 К не регистрируется, если ответственная за него ловушка (первая глубокая) опустошена, например, отжигом, и проявляется, если ловушка заполнена по первой из описанных выше методик. Пик ТЛ при 880 К обусловлен второй глубокой ловушкой, и в настоящей работе ее роль не обсуждается.

В соответствии с выбранным алгоритмом проведения исследований сначала было необходимо, используя подготовленные описанным выше первым способом образцы, получить экспериментальные доказательства возможности оптически стимулированного переселения заряда из предварительно заполненной глубокой ловушки на основную, остающуюся пустой при заполнении глубокой, путем наблюдения ФТТЛ. На рис. 1 приведены кривые термовысвечивания ФТТЛ таких образцов в зависимости от времени оптической стимуляции с $\lambda = 470$ nm. Видно, что оптическая стимуляция приводит к переселению зарядов из глубокой ловушки на более мелкие, ответственные за пики при 450 и 323 К. Запасенная в глубокой ловушке светосумма незначительно уменьшается с увеличением времени стимуляции, а в пиках при 450 и 323 К, напротив,

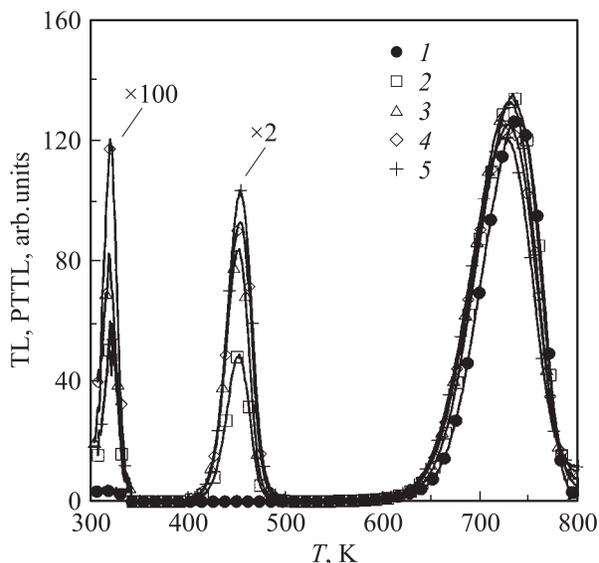


Рис. 1. ТЛ $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ с искусственно заполненной глубокой ловушкой (1) и ФТТЛ (2–5) в зависимости от времени стимуляции световым потоком с длиной волны 470 nm. 1 — 0, 2 — 2, 3 — 3, 4 — 4, 5 — 5 min.

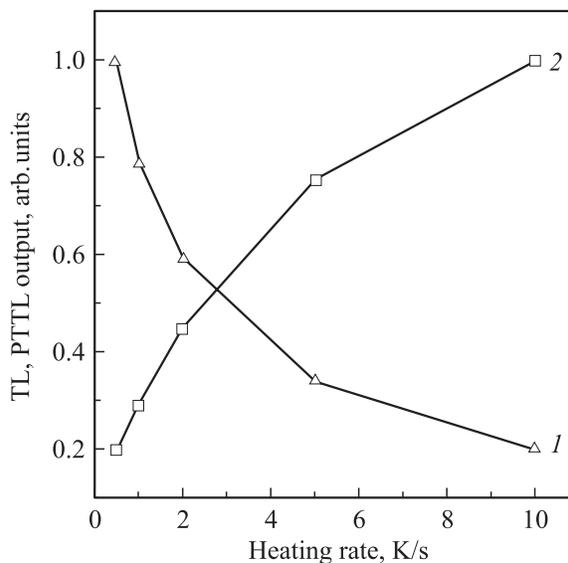


Рис. 2. Зависимость выхода ТЛ (1) и ФТТЛ (2) в пике при 450 К от скорости нагрева. 1 — в результате облучения образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ стандартной дозой излучения $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -источника, 2 — после их оптической стимуляции длиной волны 470 nm.

существенно возрастает. Сам факт возбуждения ФТТЛ в пике при 450 К является прямым доказательством интерактивного взаимодействия глубокой и основной ловушек.

В дополнение к этому были проведены измерения зависимости выхода ТЛ от скорости нагрева облученных образцов, которые показали, что ТЛ сигнал в основном пике уменьшается с увеличением скорости нагрева (кривая 1 на рис. 2). Такая зависимость выхода ТЛ

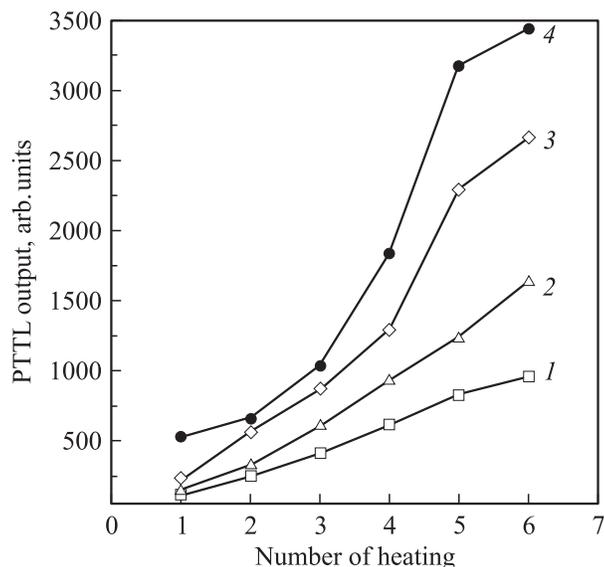


Рис. 3. Зависимость выхода ФТТЛ в пике при 450 К образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ от числа циклов „облучение–измерение ТЛ“ с разными скоростями (1 — 1, 2 — 2, 3 — 5, 4 — 10 К/с).

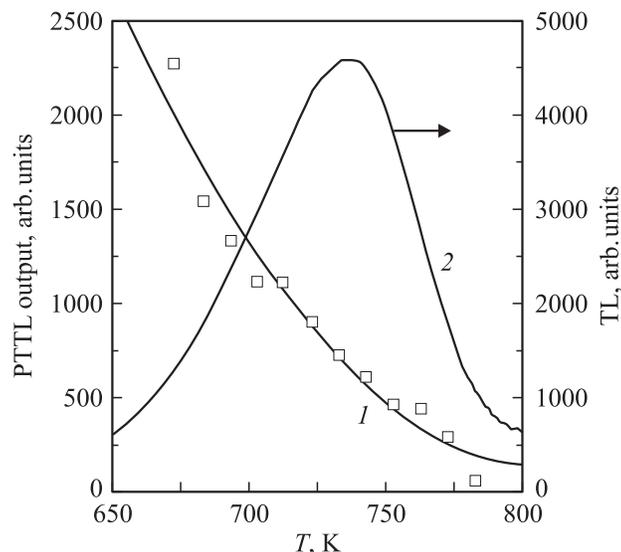


Рис. 4. Зависимость выхода ФТТЛ в пике при 450 К от температуры предварительного нагрева облученных образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ перед оптической стимуляцией (1) и кривая термовысвечивания ТЛ (2).

от скорости нагрева в модели интерактивного взаимодействия ловушек была объяснена захватом части освобожденных при нагреве носителей заряда глубокой ловушкой и, следовательно, уменьшением числа носителей, участвующих в рекомбинационных процессах, ответственных за люминесценцию [7,11]. Альтернативная точка зрения рассматривает в качестве единственной причины падения выхода ТЛ при увеличении скорости нагрева классическое внутрицентровое тушение люминесценции F -центров Мотта–Зейтца, имеющее место

в температурном диапазоне основного пика [13]. Если первое объяснение справедливо, то выход ФТТЛ в основном пике, наоборот, должен возрастать с увеличением скорости нагрева облученного образца. Последующие измерения ФТТЛ подтвердили это предположение (кривая 2 на рис. 2). Сравнение хода кривых 1 и 2 на рис. 2 показывает хорошее соответствие высказанным предположениям и позволяет утверждать, что падение выхода ТЛ с ростом скорости нагрева происходит за счет захвата части носителей на глубокую ловушку.

Концентрация носителей заряда в глубокой ловушке могла быть увеличена при прочих равных условиях путем многократных измерений ТЛ. На рис. 3 для образцов, облученных одинаковой дозой, приведена зависимость выхода ФТТЛ в пике при 450 К при различных скоростях нагрева от числа циклов накопления носителей в глубокой ловушке. Из рисунка видно, что накопление заряда в глубокой ловушке происходит эффективнее при увеличении числа циклов „облучение–измерение ТЛ“, а также при повышении скорости нагрева облученных образцов. Эксперименты показали, что переселение носителей на глубокую ловушку в процессе регистрации ТЛ имеет место даже в диапазоне относительно низких для дозиметрических измерений скоростей нагрева кристаллов 0.5–2 К/с. Последнее наблюдение стало возможным благодаря чрезвычайно высокой чувствительности используемого в работе метода ФТТЛ.

Наличие зарядово-обменной связи дозиметрической ловушки именно с первой глубокой ловушкой, ответственной за пик ТЛ при 730 К, было дополнительно проверено. Для исключения возможности того, что наблюдаемая на рис. 2 и 3 ФТТЛ связана с переселением носителей заряда из других, еще более глубоких центров захвата, исследуемая глубокая ловушка заполнялась, как обычно, при опустошении основной, после облучения образцов бета-источником при нагреве со скоростью 10 К/с. Однако в этом случае конечная температура не ограничивалась 620 К, а повышалась в каждом цикле измерений ступенчато с шагом, равным 10 К, вплоть до 800 К. После каждой ступени подъема температуры измерялась ФТТЛ. Результаты этих измерений приведены на рис. 4. Видно, что выход ФТТЛ падает по мере того, как температура достигает диапазона нестабильности глубокой ловушки 670–780 К. Скорость этого падения неравномерна. Она максимальна в области 670–730 К, соответствующей низкотемпературной части ТЛ пика глубокой ловушки, в которой сосредоточена большая часть запасенной светосуммы, и уменьшается в области 730–780 К, соответствующей высокотемпературной части пика с относительно низким выходом люминесценции. Это дает основание утверждать, что именно рассматриваемая глубокая ловушка с пиком ТЛ при 730 К заполнялась при термостимулированном опустошении основной ловушки и что именно с нее производилось фотостимулированное переселение на основную ловушку зарядов, ответственных

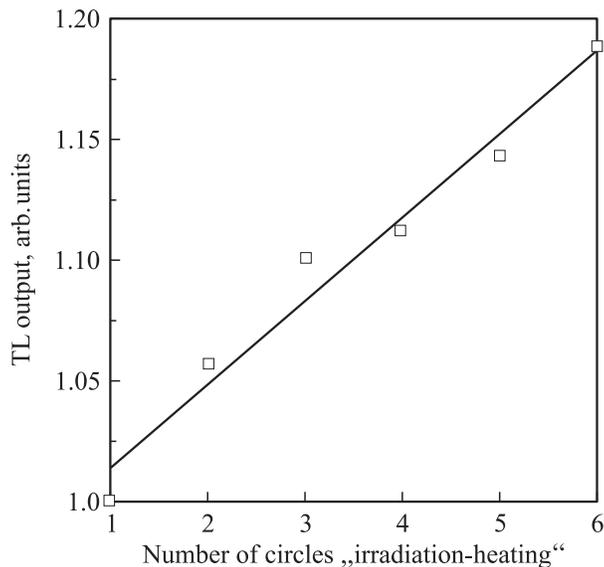


Рис. 5. Зависимость выхода ТЛ от количества предварительных циклов „облучение–нагрев со скоростью 10 К/с“.

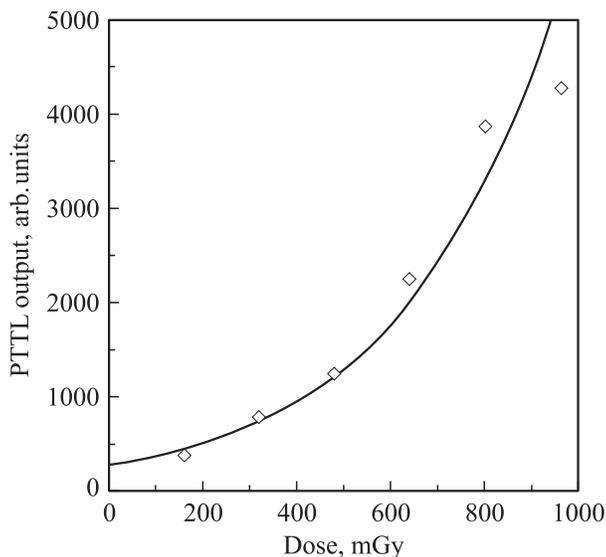


Рис. 6. Выход ФТТЛ в зависимости от дозы облучения детекторов на основе $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$.

за появление ФТТЛ. Из приведенных выше результатов следует, что эффективность заполнения глубокой ловушки оказывается зависимой от температуры, при которой появляются свободные носители заряда, причем чем ближе эта температура к диапазону температурной нестабильности глубокой ловушки, тем интенсивнее ее заполнение.

Таким образом, падение выхода ТЛ в основном пике с ростом скорости нагрева и одновременное увеличение концентрации носителей в глубокой ловушке логично связываются с захватом носителей, освободившихся при считывании ТЛ, глубокой ловушкой. Конкуренция в

пользу процесса захвата по отношению к уходу носителей на излучательные центры рекомбинации приводит к наблюдаемому снижению выхода люминесценции, величина которого может регулироваться или оставаться неизменной, если глубокая ловушка предварительно искусственно заполнена, как было показано в [7,11]. Эта закономерность наблюдалась и в обсуждаемой работе. По мере накопления носителей заряда в глубокой ловушке за счет повторения однотипных циклов облучение–нагрев при измерении ТЛ со скоростью 10 К/с выход ТЛ в основном пике возрастает (рис. 5). В соответствии с данными рис. 5 и модельными представлениями в этом случае эффективность захвата свободных носителей глубокой ловушкой падает по мере ее заполнения. В предельном случае при искусственном заполнении глубокой ловушки до насыщения выход ТЛ повышается в 5 и более раз и слабо зависит от скорости нагрева.

Практически важным следствием изученных закономерностей зарядового обмена между ловушками различной энергетической глубины в кристаллах анион-дефектного $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ является принципиальная возможность повторного измерения дозы с одного и того же детектора с использованием ФТТЛ. До сих пор считалось, что нагрев кристалла при измерении ТЛ одновременно приводит к безвозвратной потере дозиметрической информации. Результаты, полученные в настоящей работе, показывают, что в процессе первого (после облучения) измерения ТЛ имеет место „резервирование“ дозиметрической информации за счет захвата носителей заряда, освободившихся при считывании ТЛ, на глубокую ловушку. Количество таких носителей пропорционально дозе излучения, поглощенной детектором, и поэтому имеется соответствие между дозой и выходом ФТТЛ. На рис. 6 представлен выход ФТТЛ в зависимости от дозы облучения детектора, измеренной по данным ТЛ. Построенная по результатам измерений ТЛ и ФТТЛ зависимость, представленная на рис. 6, является калибровочной кривой, с помощью которой реально провести оценку поглощенной дозы. Наличие резервного канала измерения дозы в термолюминесцентной дозиметрии существенно повышает надежность измерений [14]. Для детекторов на основе кристаллов анион-дефектного $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ такая возможность продемонстрирована в настоящей работе впервые.

Таким образом, в настоящей работе предложена и реализована методика исследования при фото- и термостимуляции процессов трансфера носителей заряда между основной дозиметрической и глубокой ловушками в анион-дефектных кристаллах $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. Прямыми экспериментами подтверждено наличие интерактивной взаимосвязи между указанными ловушками. Изучены зависимости ФТТЛ от скорости нагрева и числа циклов считывания дозиметрической информации. Показана возможность использования ФТТЛ как резервного канала получения дозиметрической информации.

Список литературы

- [1] E.G. Yukihara, R. Gaza, S.W.S. McKeever, C.G. Soares. Rad. Measurements **38**, 59 (2004).
- [2] 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).
- [3] A.N. Yazici, S. Solak, Z. Ozturk, M. Topaksu, Z. Yegingil. J. Phys D: Appl. Phys. **36**, 181 (2003).
- [4] I.I. Milman, S.V. Nikiforov, V.S. Kortov. Rad. Measurements **33**, 561 (2001).
- [5] I. Tale, T.M. Piters, M. Barbosa-Flores, R. Peres-Salas, R. Aceves, M. Springis. Rad. Protect. Dosimetry **65**, 235 (1996).
- [6] V.S. Kortov, I.I. Milman, V.I. Kirpa, J. Iesz. Rad. Protect. Dosimetry **65**, 255 (1996).
- [7] I.I. Milman, V.S. Kortov, S.V. Nikiforov. Rad. Measurements **29**, 3–4, 401 (1998).
- [8] V.E. Pelenyov, V.S. Kortov, I.I. Milman. Rad. Measurements **33**, 629 (2001).
- [9] V.S. Kortov, I.I. Milman, S.V. Nikiforov. Rad. Protect. Dosimetry **100**, 75 (2002).
- [10] И.И. Мильман, В.С. Кортов, В.И. Кирпа. ФТТ **37**, 4, 1149 (1995).
- [11] И.И. Мильман, В.С. Кортов, С.В. Никифоров. ФТТ **40**, 2, 229 (1998).
- [12] В.С. Кортов, И.И. Мильман, С.В. Никифоров, В.Е. Пеленев. ФТТ **45**, 7, 1202 (2003).
- [13] M.S. Akselrod, N.A. Larsen, V. Whitley, S.W.S. McKeever. J. Appl. Phys. **84**, 6, 3364 (1999).
- [14] J.L. Muciz, V. Correcher, A. Delgado. Rad. Protect. Dosimetry **85**, 63 (1999).