

05.6;09.1

Оптически индуцированные эффекты в облученных ультрадисперсных керамиках $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—BeO}$

© С.В. Никифоров, А.Д. Борболин, А.Ю. Марфин, А.Ф. Никифоров

Уральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, Россия
E-mail: s.v.nikiforov@urfu.ru

Поступило в Редакцию 22 апреля 2019 г.

В окончательной редакции 22 апреля 2019 г.

Принято к публикации 9 июля 2019 г.

Исследованы оптически индуцированные эффекты в ультрадисперсных керамиках $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—BeO}$, облученных высокодозным импульсным электронным пучком (130 keV). Обнаружено, что при оптическом (470 nm) возбуждении керамик наблюдается оптически стимулированная люминесценция, обусловленная опустошением ловушек, связанных с пиками термолюминесценции при 380 и 530 К. Установлено, что указанные ловушки характеризуются сложным энергетическим спектром с неоднородно распределенным сечением фотоионизации. Доказана перспективность использования оптически стимулированной люминесценции керамик $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—BeO}$ в высокодозной дозиметрии (3–30 kGy).

Ключевые слова: термолюминесценция, оптически стимулированная люминесценция, высокодозная дозиметрия, ультрадисперсные керамики, сечение фотоионизации.

DOI: 10.21883/PJTF.2019.21.48466.17849

В настоящее время расширяется область применения радиационных технологий, что актуализирует задачу разработки высокодозных (более 10 Gy) детекторов ионизирующих излучений. Перспективными материалами для изготовления люминесцентных высокодозных детекторов служат ультрадисперсные оксиды металлов, обладающие высокой радиационной стойкостью [1–4]. Одними из таких материалов являются новые комплексные керамики на основе $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—BeO}$ [5]. Ранее была разработана методика синтеза и исследованы основные термолюминесцентные свойства указанных керамик [5]. Показано, что дозовая зависимость термолюминесценции (ТЛ) в пике при 530 К линейна в диапазоне доз гамма-излучения 10–300 Gy.

Альтернативным методом люминесцентной дозиметрии является метод, основанный на регистрации оптически стимулированной люминесценции (ОСЛ) [6]. В отличие от ТЛ-дозиметрии измерение ОСЛ не требует нагрева детектора, что упрощает измерительную аппаратуру и уменьшает погрешности измерений. Следует отметить, что возможности применения керамик на основе $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—BeO}$ для ОСЛ-дозиметрии ранее не исследовались.

Цель настоящей работы состоит в изучении оптически индуцированных эффектов в керамиках $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—BeO}$ и оценке возможностей их применения для высокодозной ОСЛ-дозиметрии.

Методика синтеза керамик не отличалась от описанной ранее в работе [5]. Использовались образцы в форме компактов, полученных из наноструктурного порошка $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ с размером частиц 75 nm путем холодного одноосного прессования. Для получения керамик компакты подвергались высокотемпературному

отжигу в вакуумной электропечи в присутствии углерода при $T = 1400^\circ\text{C}$ в течение 4 h. Наличие углерода является необходимым для создания в керамиках высокой концентрации бериллийсодержащих фаз [5]. По результатам измерения рентгеновской дифракции установлено, что содержание оксида бериллия в полученных керамиках составляло 8–12 wt.%, алюмината бериллия (BeAl_2O_4) — 15–18 wt.%. Кроме того, углерод обеспечивает создание восстановительных условий, что способствует повышению выхода люминесценции за счет образования большого числа кислородных вакансий. Известно, что кислородные вакансии являются эффективными центрами захвата и свечения в оксидных материалах [7,8].

ТЛ возбуждалась ускорителем электронов с энергией 130 keV (длительность импульса 2 ns, плотность тока 60 A/cm²). Поглощенная доза от одного импульса составляла 1.5 kGy. ТЛ измерялась при линейном нагреве со скоростью 2 K/s с помощью ФЭУ-142 со спектральной чувствительностью 112–400 nm. Для оптической стимуляции люминесценции образцы освещались светодиодами с длиной волны излучения 470 nm. ОСЛ регистрировалась в режиме непрерывного возбуждения (CW-OSL) с помощью ФЭУ „Hamamatsu 10722-210“ со спектральной чувствительностью 230–700 nm. Для исключения попадания излучения светодиодов на ФЭУ перед ним устанавливался фильтр, поглощающий свет с длинами волн 400–600 nm.

На рис. 1 приведена кривая ТЛ полученных керамик, облученных электронным пучком дозой 15 kGy (кривая 1). Видно, что кривая содержит изолированный пик В при 530 К, который ранее рассматривался в

качестве основного дозиметрического [5]. Также регистрировался пик *A* мелких ловушек при 380 К. Кроме того, видны следы пика *C* при 740 К, связанного с глубокими ловушками. Следует отметить, что глубокие ловушки обнаружены нами в исследуемых керамиках впервые.

На рис. 1 представлены также кривые ТЛ керамик, освещенных после высокодозного облучения (15 кГр) светодиодами в течение 1–20 мин (кривые 2–5). Видно, что при облучении светом происходит падение интенсивности ТЛ пиков *A* и *B*, обусловленное оптическим опустошением соответствующих ловушек. При этом интенсивность пика *C* практически не изменяется при облучении светом (см. также вставку на рис. 1). Вероятно, ловушки, связанные с данным пиком, характеризуются низким значением сечения фотоионизации. Другой возможной причиной отсутствия оптического обесцвечивания ТЛ этих ловушек является их большая энергетическая глубина, которая может существенно превышать энергию используемого оптического излучения светодиода.

Из рис. 1 видно также, что с ростом времени облучения светом наблюдается смещение максимумов пиков *A* и *B* в высокотемпературную область. Особенно заметен данный эффект при больших временах оптического освещения. Изменение температурного положения и формы пиков ТЛ при оптическом обесцвечивании наблюдалось ранее в анион-дефектных кристаллах оксида алюминия для дозиметрического пика при 450 К [9] и в кристаллах $\text{KMgF}_3:\text{Ce}^{3+}$ для пика при 420 К [10]. Указанные закономерности связывались с тем, что ловушки, ответственные за данные пики ТЛ, являются не моноэнергетическими, а сложным образом распределенными по энергетической глубине [9,10]. Ранее [5] на основе анализа ТЛ методом $T_m - T_{stop}$ [11] уже было высказано предположение о том, что ловушки, связанные с пиком *B* в керамиках $\text{Al}_2\text{O}_3-\text{BeO}$, характеризуются распределением по энергии активации. Полученные нами результаты (рис. 1) показывают, что сложный энергетический спектр характерен для ловушек не только пика *B*, но и пика *A* в исследуемых образцах. При этом оптическому опустошению в большей степени подвержена низкотемпературная часть ловушек указанных пиков, что вызывает их смещение в высокотемпературную область с ростом времени освещения.

На рис. 1 также приведена зависимость интенсивности максимума ОСЛ от температуры ступенчатого отжига (кривая *b*). Отжиг проводился непосредственно в экспериментальной установке со скоростью нагрева 2 К/с. При этом конечная температура нагрева варьировалась от 300 до 580 К. Из рис. 1 видно, что вклад в ОСЛ исследуемых керамик вносят те же ловушки, которые вызывают появление пиков ТЛ *A* и *B*, поскольку в пределах данных пиков наблюдается интенсивное падение сигнала ОСЛ за счет опустошения соответствующих ловушек. При этом более существенную роль в

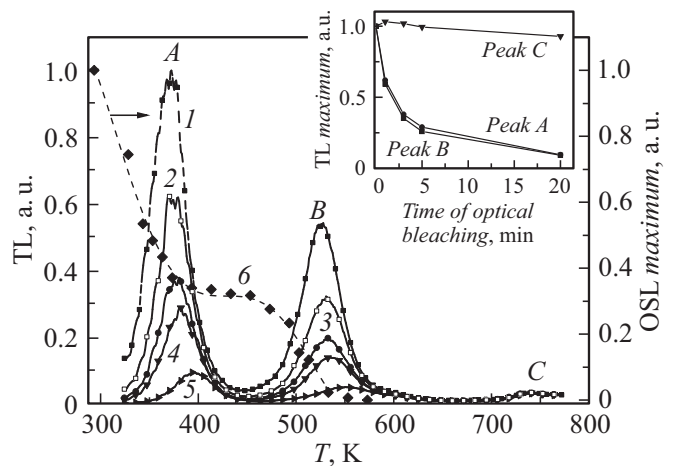


Рис. 1. Кривые ТЛ исходных (1) и освещенных светодиодами (470 nm) керамик в течение 1 (2), 3 (3), 5 (4) и 20 min (5). Кривая 6 — зависимость максимума ОСЛ от температуры ступенчатого отжига. На вставке — зависимости интенсивности различных пиков ТЛ от времени оптической стимуляции.

формировании ОСЛ играет мелкая ловушка, связанная с пиком *A*, поскольку ее опустошение приводит к падению интенсивности максимума ОСЛ более чем в 2 раза. Из рис. 1 видно также, что отжиг до $T = 580$ К приводит к практически полному исчезновению ОСЛ. Данный результат свидетельствует о том, что глубокие ловушки, связанные с пиком *C*, не вносят вклад в ОСЛ исследуемых образцов. Можно также заметить, что наиболее интенсивное падение сигнала ОСЛ наблюдается при температурах, соответствующих низкотемпературной части пиков *A* и *B* (по сравнению с высокотемпературной). Этот результат согласуется с данными исследования оптического обесцвечивания ТЛ (кривые 2–5) и еще раз подтверждает наличие сложного энергетического спектра ловушек в керамиках $\text{Al}_2\text{O}_3-\text{BeO}$.

Для более детальной оценки вклада различных ловушек в оптически индуцированные процессы нами были изучены особенности кинетики затухания ОСЛ образцов, отожженных при различных температурах. На рис. 2 приведены нормированные кривые ОСЛ, построенные в логарифмическом масштабе, для ряда температур. Видно, что форма всех кривых существенно отличается от прямой линии. Данный факт свидетельствует о том, что за ОСЛ ответственны не моноэнергетические ловушки, а центры захвата, более сложно распределенные по глубине. Анализ кривых, приведенных на рис. 2, позволил выявить следующие закономерности. В диапазоне температур 300–393 К, соответствующих опустошению ловушек ТЛ пика *A* (рис. 1), кривая ОСЛ смещается вверх, что указывает на уменьшение скорости затухания. При $T = 393-473$ К кривые не претерпевают заметных изменений. При температурах 473–503 К,

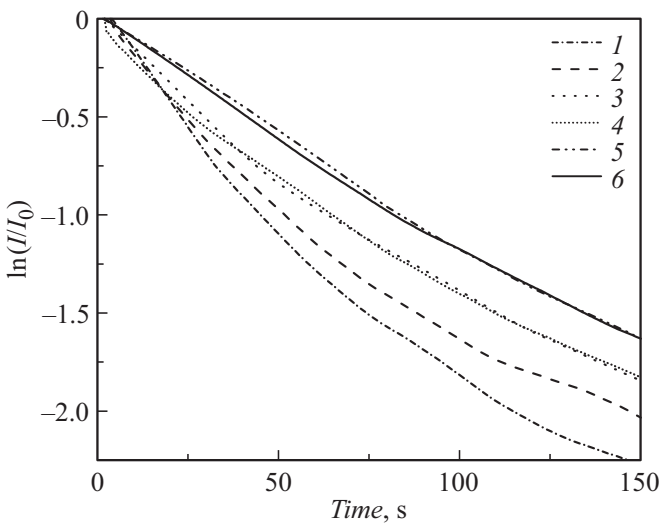


Рис. 2. Нормированные кривые затухания ОСЛ, построенные в логарифмических координатах, для исходных образцов (1) и образцов, отожженных при температурах 328 (2), 393 (3), 473 (4), 503 (5), 513 К (6).

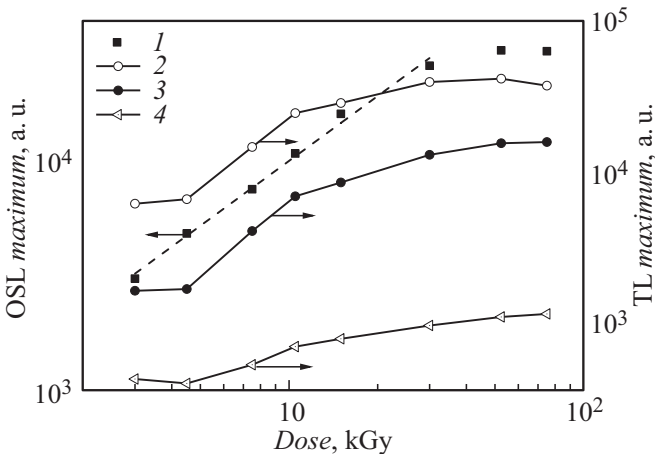


Рис. 3. Дозовые зависимости интенсивности максимума ОСЛ (1) и ТЛ в пиках А (2), В (3) и С (4).

соответствующих низкотемпературной части ловушек ТЛ пика В (рис. 1), наблюдается дальнейшее падение скорости затухания ОСЛ, которое исчезает при $T > 503$ К.

Известно, что скорость затухания ОСЛ при постоянной интенсивности стимулирующего света пропорциональна сечению фотоионизации соответствующих ловушек [6]. Данные рис. 2 показывают, что мелкие ловушки, связанные с пиком А, имеют большую величину сечения фотоионизации, чем ловушки пика В. При этом ловушки, обуславливающие низкотемпературные части пиков А и В, характеризуются большим сечением фотоионизации, чем высокотемпературные. Данное предположение подтверждается также наблюдаемым смещением максимумов пиков ТЛ в высокотемператур-

ную область с ростом времени оптической стимуляции (рис. 1).

На рис. 3 приведены дозовые зависимости интенсивности максимумов ОСЛ и ТЛ пиков А, В и С при облучении образцов импульсным электронным пучком. Видно, что дозовые зависимости ТЛ всех пиков характеризуются существенной нелинейностью, и их использование в практической ТЛ-дозиметрии является затруднительным. Вместе с тем дозовая зависимость ОСЛ близка к линейной в диапазоне 3–30 кГр (коэффициент нелинейности 0.94). Полученный результат доказывает перспективность использования эффекта ОСЛ в высокодозной дозиметрии (более 1 кГр).

Таким образом, в работе обнаружено, что оптическое возбуждение керамик Al_2O_3-BeO вызывает опустошение ловушек, связанных с пиками при 380 и 530 К, в исследуемых образцах. Эти же ловушки обуславливают появление ОСЛ. Установлен сложный характер энергетического спектра указанных ловушек, сечение фотоионизации которых уменьшается с ростом температуры опустошения. Обоснована возможность использования эффекта ОСЛ в высокодозной дозиметрии импульсных электронных пучков (3–30 кГр).

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 18-72-10082).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Kortov V.S., Zvonarev S.V., Kiryakov A.N., Ananchenko D.V. // Rad. Meas. 2016. V. 90. P. 196–200.
- [2] Nikiforov S.V., Kortov V.S., Petrov M.O. // Rad. Meas. 2016. V. 90. P. 252–256.
- [3] Salah N., Habib S.S., Khan Z.H., Djouider F. // Rad. Phys. Chem. 2011. V. 80. P. 923–928.
- [4] Blair M.W., Jacobsohn L.G., Tornga S.C., Ugurlu O., Bennett B.L., Yukihiro E.G., Muenchausen R.E. // J. Lumin. 2010. V. 130. P. 825–831.
- [5] Nikiforov S.V., Avdyushin I.G., Ananchenko D.V., Kiryakov A.N., Nikiforov A.F. // Appl. Rad. Isotop. 2018. V. 141. P. 15–20.
- [6] Yukihiro E.G., McKeever S.W.S. Optically stimulated luminescence. Fundamental and applications. Chichester: Wiley, 2011. 362 p.
- [7] Popov A.I., Kotomin E.A., Maier J. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B. 2010. V. 268. P. 3084–3089.

- [8] *Ito M., Fujiwara A., Uchino T.* // J. Phys. Chem. 2009. V. 113. P. 20949–20957.
- [9] *Akselrod A.E., Akselrod M.S.* // Rad. Prot. Dosim. 2002. V. 100. P. 217–220.
- [10] *Le Masson N.J.M., Bos A.J.J., Van Eijk C.W.E., Furetta C., Chaminade J.P.* // Rad. Prot. Dosim. 2002. V. 100. P. 229–234.
- [11] *McKeever S.W.S.* // Phys. Status Solidi A. 1980. V. 62. P. 331–340.