

**ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,  
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ**

УДК 539.1.074+544.541+544.542.122

**ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫЕ ДОЗИМЕТРЫ НА ОСНОВЕ КЕРАМИКИ  
ИЗ ОКСИДА И НИТРИДА АЛЮМИНИЯ**

© 2021 г. Н. Л. Алукер<sup>a,\*</sup>, А. С. Артамонов<sup>b</sup>, Т. И. Гимадова<sup>c</sup>, А. С. Зверев<sup>d</sup>

<sup>a</sup> Кемеровский государственный университет  
Россия, 650000, Кемерово, ул. Красная, 6

<sup>b</sup> Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”  
Россия, 115409, Москва, Каширское шоссе, 31

<sup>c</sup> ФГБУ ГНЦ – Федеральный медицинский биофизический центр им. А.И. Бурназяна ФМБА России  
Россия, 123182, Москва, ул. Живописная, 46

<sup>d</sup> Федеральный исследовательский центр угля и углекислоты СО РАН  
Россия, 650000, Кемерово, просп. Советский, 18

\*e-mail: naluker@gmail.com

Поступила в редакцию 02.05.2021 г.

После доработки 15.05.2021 г.

Принята к публикации 18.05.2021 г.

Представлены результаты исследования люминесцентных характеристик серийных керамических подложек на основе AlN и Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Полученные результаты позволили определить условия, при которых эти материалы могут быть использованы в дозиметрии ионизирующих излучений. В качестве объектов для сравнения использованы термолюминесцентные детекторы ТЛД-К и ТЛД-500.

DOI: 10.31857/S0032816221050177

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Исследования керамических материалов в последние годы бурно развиваются, что связано с налаженным многими фирмами синтезом материалов для специальных нужд электронной техники и все растущими возможностями применения этих материалов в смежных областях. Наиболее перспективными конструкционными материалами для формирования электронных схем в настоящее время являются керамики на основе алюминия – нитрид алюминия (AlN) и корунд (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Большинство новых конструкционных материалов обладают термолюминесцентными свойствами. В ряде исследований стандартные и синтезированные керамики, а также материалы подложек микросхем исследовались на предмет использования их в качестве детекторов ионизирующего излучения при оптической и термостимуляции [1–4]. Изучение термо- и фотолюминесцентных характеристик серийно выпускаемых керамических материалов обеспечит возможность их применения в качестве дешевых термолюминесцентных или оптически стимулированных детекторов излучения. Однако характеристики керамик, изготовленных по разным технологиям разными производителями, не вполне идентичны, что требует разработки критериев для паспортизации мате-

риалов и проведения исследований конкретных характеристик определенной партии керамик.

В данной работе приведены результаты исследования спектров поглощения, фото- и термолюминесценции, кинетики люминесценции образцов на основе оксидов кремния и алюминия, а также нитрида алюминия до и после воздействий света и радиации. Основная серия экспериментов по определению характеристик керамик проведена на серийных легкодоступных керамических подложках китайского производства. В качестве основных объектов для сравнения использованы реальные термолюминесцентные детекторы ТЛД-500 (α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) и ТЛД-К (SiO<sub>2</sub>) [5–10].

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТ

В качестве образцов для исследования использовались:

– стандартные сапфировые керамические подложки Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> типа ВК 96 размером 1.5 × 2.5 см и толщиной 0.38 мм;

– стандартные керамические подложки состава 96–99% AlN плюс неконтролируемые добавки, размер подложек 1.5 × 2.5 см, толщина 0.5 мм;

– термолюминесцентные детекторы ТЛД-500 на основе α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в виде монокристаллических

шлифованных дисков (масса 75 мг, диаметр 5 мм, толщина 1 мм), выпускаемые серийно и широко используемые в дозиметрическом контроле [5–8];

– термолюминесцентные детекторы ТЛД-К из аморфного стеклокерамического материала на основе  $\text{SiO}_2$  массой 11 мг, размером  $3 \times 3$  мм и толщиной 0.5 мм, детекторы представляли собой полупрозрачный аморфный чип [9, 10] и в данной работе использовались в качестве основного объекта сравнения, поскольку используемая дозиметрическая аппаратура аттестована по ним.

Для изучения фотолюминесценции использовался прибор “Флюорат-02-Панорама”. Прибор содержит два монохроматора и предназначен для исследования спектров возбуждения и регистрации люминесценции, кинетики люминесценции и оптического поглощения. Рабочий диапазон длин волн анализатора 210–860 нм. Длительность импульса возбуждения 1 мкс. Для исследования фосфоресценции спектры измерялись при различных длительностях стробирования (до 1 мс) и задержках строба (до 6 мс). При исследовании образцов малых размеров использовалась диафрагма с круглым отверстием диаметром  $\sim 3$  мм.

Спектры поглощения измерялись в диапазоне длин волн 190–1900 нм с использованием спектрофотометров Shimadzu-1700 и Shimadzu-3600. При измерениях малых образцов применялись те же диафрагмы, что и при измерении люминесценции.

Термолюминесцентные исследования проводились с использованием модифицированного дозиметрического комплекса ДТУ-01М, обладающего высокой чувствительностью к слабым световым потокам и обеспечивающего регистрацию сигнала в температурном диапазоне до  $450^\circ\text{C}$  с возможностью изменения скорости нагрева от 1 до  $20^\circ\text{C}/\text{с}$ . Для исследования термолюминесценции керамик методом лазерной резки из керамических пластин были подготовлены образцы (детекторы) размером  $3 \times 3$  мм. Таким образом, размеры детекторов ТЛД-К и нарезанных образцов керамик были одинаковыми; толщины образцов сравнимы: ТЛД-К и  $\text{AlN}$  – 0.5 мм,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  – 0.38 мм; массы образцов составили: 10.9, 14.7 и 13.3 мг соответственно. Детектор ТЛД-500 отличался по размерам: толщина 1 мм, диаметр 5 мм, он имел массу 75 мг и более высокую прозрачность (монокристалл со шлифованной поверхностью). При сравнении чувствительностей образцов к воздействию излучения проводилась поправка интенсивности сигнала в максимуме термостимулированной люминесценции (т.с.л.) на массу детектора.

Для облучения материалов небольшими дозами подпороговых энергий использовался импульсный рентгеновский аппарат АРИНА с максимальной энергией 250 кэВ; для облучения в области доз  $>0.1$  кГр использовалось  $\gamma$ -излучение

$^{60}\text{Co}$  (установка РХМ- $\gamma$ -20). Дозиметрический прибор ДТУ-01М откалиброван совместно с детекторами ТЛД-К, используемыми для контроля дозы облучения.

В качестве источника ультрафиолета (у.ф.) был использован облучатель ОУФд-01 с ртутной газоразрядной лампой низкого давления с кварцевой колбой (диапазон ультрафиолета 205–315 нм, максимум на 253.7 нм).

После резки и обработки лазером образцы керамики не отжигались, фиксировались т.с.л., вызванная воздействием лазерной обработки. При исследовании влияния оптического и ионизирующего воздействий все образцы перед измерениями подвергались отжигу в стандартном для термолюминесцентных детекторов режиме (медленный программируемый нагрев до температуры  $450^\circ\text{C}$  с последующим охлаждением в течение 0.5 ч). При небольших дозах (сигналах т.с.л.) высокотемпературный вклад теплового излучения нагревательного элемента вычитался для получения истинного сигнала. Скорость нагрева варьировалась в разных экспериментах от 1 до  $20^\circ\text{C}/\text{с}$ . Режим нагрева подбирался перед проведением серии измерений и не менялся в процессе исследований всех сравниваемых объектов.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

#### 3.1. Спектры поглощения

На рис. 1 приведены спектры оптического поглощения детекторов и образцов керамик в единицах десятичного логарифмического коэффициента поглощения. Все образцы имеют значительный фон экстинкции. Рассеяние в видимой области спектра связано с шероховатостью поверхности образцов и для детекторов уменьшается при их оптической полировке. Образцы керамик и ТЛД-К имеют сильное поглощение в у.ф.-области. Поглощение всех образцов в у.ф.-области на длинах волн  $>200$  нм обусловлено наличием собственных и примесных дефектов, так как ширина запрещенной зоны для нитрида алюминия составляет  $\sim 6.2$  эВ, для корунда  $\sim 9.5$  эВ, для кварца  $\sim 9$  эВ. Поглощение детектора ТЛД-500 в у.ф.-области обусловлено присутствием в материале анионных вакансий в разных зарядовых состояниях ( $F^-$  и  $F^{+}$ -центров) [5–8].

Натрий силикатная основа материала детектора ТЛД-К обуславливает его непрозрачность в диапазоне длин волн до 300 нм. По всей видимости, аналогичные примеси влияют и на у.ф.-поглощение керамик. Судя по спектрам, при измеренных параметрах экстинкции объемная люминесценция в области  $\sim 400$ –500 нм будет регистрироваться в следующих приповерхностных слоях:  $\sim 0.15$  мм для керамики на основе  $\text{AlN}$ ,  $\sim 0.1$  мм для керамики

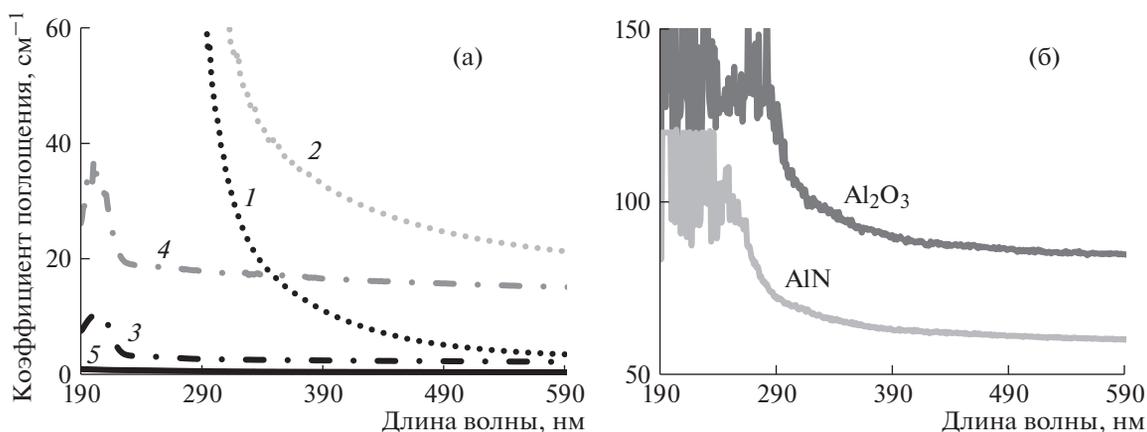


Рис. 1. Спектры поглощения: а – полированного (1) и реального (2) детекторов ТЛД-К, полированного (3) и реального (4) детекторов ТЛД-500, а также чистого монокристалла  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  (5); б – керамических подложек из  $\text{Al}_2\text{O}_3$  и  $\text{AlN}$ .

ки на основе  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , ~0.6 мм для детектора ТЛД-500 и ~0.3 мм для детектора ТЛД-К. Ультрафиолетовое возбуждение в области 190–290 нм в ТЛД-К и керамиках эффективно поглощается в приповерхностном слое ~0.07 мм, обеспечивая значительное влияние поверхности в люминесцентных исследованиях.

В у.ф.-области на краю собственного поглощения керамики  $\text{AlN}$  выявляется полоса поглощения ~5 эВ, а в керамике  $\text{Al}_2\text{O}_3$  – полосы поглощения 4.8 и 6 эВ (рис. 1б).

### 3.2. Спектры люминесценции

#### 3.2.1. Детекторы ТЛД-500 ( $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) и ТЛД-К.

Спектры рентгено-, фото- и термолюминесценции анион-дефектного монокристаллического  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  хорошо изучены [5–8, 11]. В них доминирует люминесценция анионных вакансий в разных зарядовых состояниях: длительная люминесценция триплетно возбужденного  $F$ -центра (410 нм) и свечение, связанное с внутрицентровым переходом синглетно возбужденного  $F^+$ -центра (330 нм – быстрая люминесценция) [5–8]. В рентгенолюминесценции проявляется быстрая излучательная рекомбинация электрона на возбужденном  $F^+$ -центре, т.е. экситонная люминесценция на длине волны 380 нм [11]. Синглетный возбужденный уровень  $F$ -центра находится вблизи зоны проводимости, что обеспечивает возможность его ионизации и электронно-дырочной рекомбинации, приводящей к возбуждению триплетного уровня с последующей внутрицентральной люминесценцией. Уровни триплетно возбужденного  $F$ -центра и синглетно возбужденного  $F^+$ -центра практически совпадают, что обеспечивает конверсию  $F \leftrightarrow F^+$ . Центры, образованные кислородными вакансиями, являются определяющими в формировании оптических и люминесцентных

свойств целого ряда оксидов ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{BeO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{ZnO}$  и др.) [12–14].

При микросекундном импульсном возбуждении в наших экспериментах наблюдалась интенсивная люминесценция  $F^+$ -центров с максимумом на длине волны 330 нм (рис. 2), которая короче длительности импульса возбуждения и составляет, по литературным данным, порядка нескольких наносекунд [11]. Люминесценция  $F$ -центров длительная (~36 мс), поэтому для ее измерения применялся режим регистрации с задержкой регистрирующего строба при его максимальной длительности. Наряду с люминесценцией собственных дефектов, наблюдалась люминесценция длительностью ~3.5 мс, обусловленная примесью хрома ( $\text{Cr}^{3+}$ , 693 нм), возбуждаемая при длинах волн ~210, 260, 400 и 550 нм.

Основная роль в формировании спектра поглощения и люминесценции принадлежит  $F$ - и  $F^+$ -центрам и примеси  $\text{Cr}$ , которые имеются в ис-

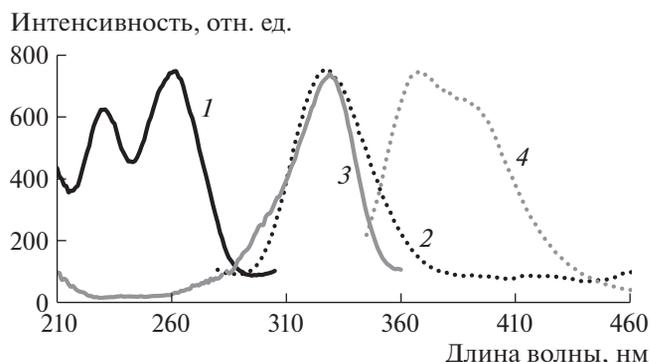


Рис. 2. Спектры возбуждения и фотолюминесценции детекторов ТЛД-500 (соответственно 1, 2) и ТЛД-КМ (соответственно 3, 4) при микросекундном импульсном возбуждении. Задержка строба 0.95 мкс, длительность стробирования 4.95 мкс.

ходном материале. С учетом возможности перезарядки центров соотношения их концентраций меняются при воздействии ионизирующего излучения, в процессе регистрации т.с.л. и отжига.

В спектре люминесценции детектора ТЛД-К наблюдается интенсивная короткая люминесценция с перекрывающимися полосами ~370 и ~390 нм, максимум возбуждения которых приходится на 330 нм (см. рис. 2).

При возбуждении на длине волны 210 нм фиксируется широкая полоса люминесценции с максимумом ~410 нм, она практически идентична люминесценции  $F$ -центра в ТЛД-500, только быстрая. В миллисекундном диапазоне наблюдается люминесценция в области длин волн 480–520 нм и на 680 нм, которая носит примесный характер. Предположительно, примеси с переменной валентностью (Ti, Mn, Sr, P и Ce) и щелочно-земельные примеси Ca, K и Na (как компенсаторы заряда), обнаруженные в материале по результатам элементного анализа, играют роль в длительной люминесценции и влияют на выход люминесценции материала детектора ТЛД-К. Люминесценция  $\text{Cr}^{3+}$  в нем не фиксируется.

Приведенные на рис. 2 спектры возбуждения и люминесценции детекторов ТЛД-500 и ТЛД-К зарегистрированы в одинаковых условиях. Выходы быстрой люминесценции высоки и сравнимы для обоих детекторов. Вызывает интерес перекрытие быстрой люминесценции  $F^+$ -центров в ТЛД-500 с возбуждением быстрой люминесценции ТЛД-К, обусловленной собственными дефектами, предположительно  $V_0^{++}$ .

Материал детектора ТЛД-К (стеклокерамика) содержит примеси в концентрациях до нескольких процентов, синтезирован, как и дозиметрический  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , в восстановительных условиях при высоких температурах в присутствии углерода, поэтому анионные вакансии в разных зарядовых состояниях и примеси с переменной валентностью играют в нем, как и в дозиметрическом  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , основную роль в формировании люминесценции.

**3.2.2. Корундовая керамика.** В длительной люминесценции корундовой керамики, наряду с люминесценцией  $\text{Cr}^{3+}$  (693 нм), наблюдается узкая полоса вблизи 680 нм, обусловленная, вероятно, примесью  $\text{Mn}^{4+}$ , с максимумом возбуждения на длине волны ~320 нм [13, 15–19]. При возбуждении на длине волны 260 нм проявляется слабая люминесценция триплетных  $F$ -центров в области 410–460 нм.

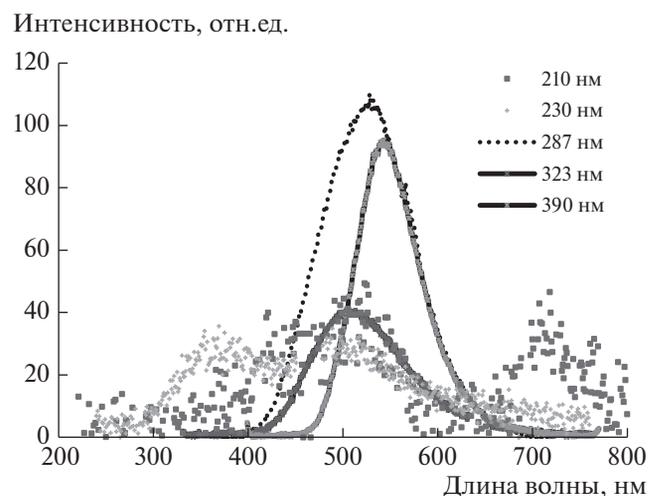
В быстрой люминесценции проявляется  $F^+$ -центр. Для керамики рассматривается возможность присутствия парных анионных вакансий типа  $F_2^-$ ,

$F_2^+$  и  $F_2^{2+}$ -центров [8]. В наноструктурированной керамике  $\text{Al}_2\text{O}_3$  в спектрах фиксируют полосы люминесценции в области 360–390 нм с возбуждением в область 240–260 нм, которые связывают с  $F$ - или  $F^+$ -центрами [6, 7, 12], расположенными на поверхности  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

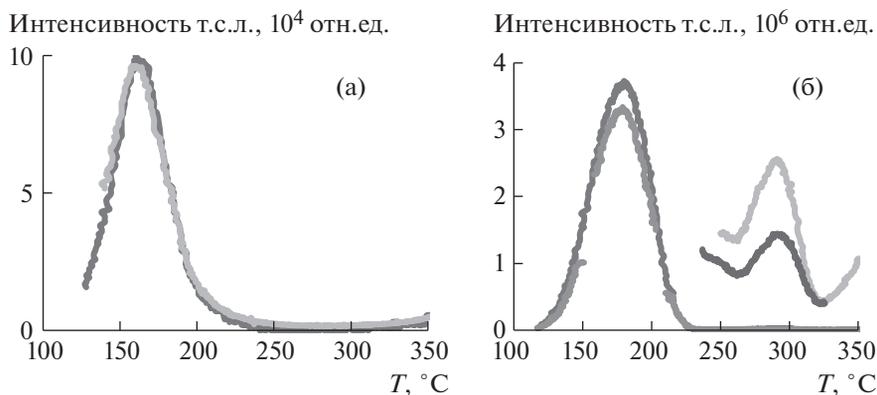
**3.2.3. Керамика на основе AlN.** Быстрая люминесценция в керамике на основе AlN, так же как и в  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , возбуждается в области 260–280 нм. Люминесценция в несколько раз слабее, чем в керамике  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , и может быть обусловлена присутствием корундовой фазы в нитриде алюминия. Спектры длительной люминесценции AlN при разных возбуждениях спектра приведены на рис. 3. При возбуждении в области прозрачности люминесценция проявляется в области 480–580 нм. При возбуждении на длинах волн 210 и 230 нм дополнительно наблюдается люминесценция в области 350–450 нм и 710 нм.

В спектре возбуждения люминесценции с длинами волн 480–580 нм присутствуют три основные области: 230–250, 280 и 387 нм, что может свидетельствовать о единой природе наблюдаемой широкой люминесценции в этой области.

Высокий световыход, большая ширина полосы люминесценции в области 480–580 нм и миллисекундное время высвечивания обеспечивают возможность использования керамики на основе AlN в качестве люминофора для изготовления светодиодов и перспективного материала для изготовления детекторов излучения.



**Рис. 3.** Люминесценция керамики на основе AlN при микросекундном импульсном возбуждении на разных длинах волн. Задержка строба 50 мкс, длительность строба 1000 мкс.



**Рис. 4.** Термостимулированная люминесценция: **а** – двух детекторов ТЛД-К и **б** – двух детекторов ТЛД-500 (масштаб для высокотемпературных пиков увеличен в 100 раз). Доза 8 Гр.

### 3.3. Термостимулированная люминесценция термолюминесцентных детекторов ТЛД-К и ТЛД-500

На рис. 4 приведены кривые термовысвечивания детекторов ТЛД-К и ТЛД-500, зарегистрированные при скорости нагрева  $\sim 2.7^\circ\text{C}/\text{с}$  при облучении рентгеновским излучением с максимальной энергией 250 кэВ, дозой 8 Гр через три дня после облучения. Эти детекторы далее использовались в качестве объектов сравнения при оценке дозиметрических характеристик керамик. В данных условиях регистрации основные дозиметрические пики расположены при  $165^\circ\text{C}$  для ТЛД-К и  $178^\circ\text{C}$  для ТЛД-500. Полуширины пиков сравнимы. Небольшие различия в форме полос и их температурном положении могут быть связаны с различием толщин детекторов.

Для ТЛД-500 наблюдается высокотемпературный пик  $\sim 280^\circ\text{C}$ , интенсивность которого в  $\sim 200$  раз слабее основного дозиметрического пика. Интенсивности сигнала т.с.л. в основных дозиметрических пиках для детекторов различаются в  $\sim 35$  раз, а массы детекторов  $\sim$  в 7 раз, следовательно, чувствительности материалов на единицу массы детектора различаются в  $\sim 5$  раз в пользу детектора ТЛД-500.

Анион-дефектный монокристалл  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  (ТЛД-500), помимо чувствительности к ионизирующему излучению, обладает сильной чувствительностью к свету, максимальная интенсивность т.с.л. наблюдается при возбуждении у.ф.-излучением. В спектре поглощения  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  этот диапазон соответствует области поглощения  $F$  и  $F^+$ -центров и примеси хрома. Чувствительность к облучению в видимой области обусловлена примесью Сг. В отличие от ТЛД-500, детектор ТЛД-К слабо подвержен влиянию у.ф.-засветки на термолюминесцентные характеристики, так как у.ф.-свет  $< 300$  нм практически не проникает в детектор из-за сильного поглощения в тонком приповерхностном

слое. Чувствительности к нефiltroванному свету у.ф.-лампы (максимум на длине волны 254 нм) с учетом поправки на массы детекторов различаются для ТЛД-500 и ТЛД-К в  $\sim 2600$  раз, что делает возможной работу с детекторами ТЛД-К на свету. Проведенный различными методами расчет энергии активации ловушек, обеспечивающих основной дозиметрический пик, дает величину  $1.1 \pm 0.1$  эВ для основных дозиметрических пиков обоих детекторов. При температуре  $177^\circ\text{C}$  высвечивание ловушки с такой глубиной происходит за десятки–сотни микросекунд. При комнатной температуре такая глубина ловушки обеспечивает сохранение информации в течение нескольких лет после облучения, обеспечивая фединг (спад показаний при хранении облученного детектора)  $\sim 20\%$  в течение года после облучения. Наличие более мелких ловушек в обоих материалах вызывает небольшую дополнительную потерю информации об облучении в первые часы после облучения.

При увеличении скорости нагрева детектора ТЛД-К от 1 до  $10^\circ\text{C}/\text{с}$  интенсивность основного дозиметрического пика растет пропорционально изменению скорости нагрева, что сохраняет светосумму пика неизменной (рис. 5). Более низкие и более высокие скорости приводят к изменению светосуммы сигнала термолюминесценции, т.е. нежелательны. При слишком медленной скорости нагрева светосумма пика растет за счет того, что более глубокие ловушки могут вносить вклад в формирование сигнала. При увеличении скорости более  $10^\circ\text{C}/\text{с}$  происходит потеря сигнала из-за того, что за время регистрации не успевает произойти полное высвечивание светосуммы.

В области температур до  $400^\circ\text{C}$  в т.с.л. детекторов ТЛД-500 и ТЛД-К регистрируются, по крайней мере, два пика – дозиметрический и более высокотемпературный. Для обоих пиков при облучении в определенном диапазоне доз наблюда-

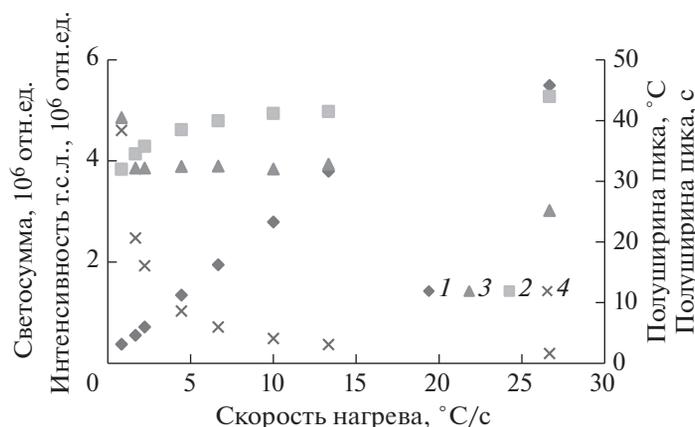


Рис. 5. Зависимости интенсивности т.с.л. (1), полуширины (в градусах Цельсия) (2), полуширины (в секундах) (4) и светосуммы (3) дозиметрического пика детектора ТЛД-К от скорости нагрева. Доза 50 Гр, источник  $^{60}\text{Co}$ .

ется линейность накопления термолюминесцентного сигнала от дозы облучения. Затем имеет место выход на насыщение, а при последующем росте дозы – даже падение сигнала. Для детекторов ТЛД-К линейность зависимости выхода т.с.л. от дозы облучения выполняется до доз  $\sim 1$  кГр, что является своеобразным рекордом для термолюминесцентных детекторов [9, 10]. Рекордными являются также характеристики детектора при больших плотностях излучения [10].

Наиболее популярные в индивидуальном дозиметрическом контроле детекторы ТЛД-100 (LiF-Mg, Ti) обладают в пересчете на массу, по крайней мере, в 3 раза меньшей чувствительностью к облучению, чем ТЛД-К, и в 15 раз меньшей, чем ТЛД-500. Отклонение от линейности их дозовой зависимости в дозиметрическом пике наступает при дозах  $\sim 1$ –10 Гр.

### 3.4. Термостимулированная люминесценция керамических образцов

**3.4.1.  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .** На рис. 6 показана кривая т.с.л. неотожженного после воздействия лазера детектора из керамики  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

В т.с.л., наведенной лазерной резкой, наблюдаются три максимума: при 175, 250 и 350°C. При облучении рентгеновским излучением с энергией  $\sim 250$  кэВ дозами  $\sim 8$  и  $\sim 40$  Гр после отжига сигнала, наведенного лазерной обработкой, хорошо фиксируются те же пики т.с.л., что свидетельствует об идентичности термолюминесцентных сигналов, наведенных лазерной резкой и облучением. Удельная чувствительность к ионизирующему излучению детектора из корундовой керамики в  $\sim 70$  раз ниже, чем ТЛД-К. Чувствительность к нефилтрованному свету у.ф.-лампы детектора из корундовой керамики существенно ниже, чем у детектора ТЛД-500, и сопоставима с чувствительно-

стью к свету детектора ТЛД-К, что связано с сильным поглощением у.ф. (см. рис. 16).

Из-за низкой чувствительности к свету и ионизирующему излучению керамика на основе  $\text{Al}_2\text{O}_3$  бесперспективна в качестве материала термолюминесцентного детектора, но достаточно перспективна в качестве материала подложек для пленочных высокочувствительных термолюминесцентных детекторов. Наличие высокотемпературных пиков на кривой термолюминесценции может быть интересно (при выполнении дополнительных исследований) для дозиметрии в критических условиях (при разогреве среды при воздействиях ионизирующего излучения).

**3.4.2. AlN.** Интересной и неоднозначной оказалась термолюминесценция детекторов, приготовленных из керамики на основе AlN.

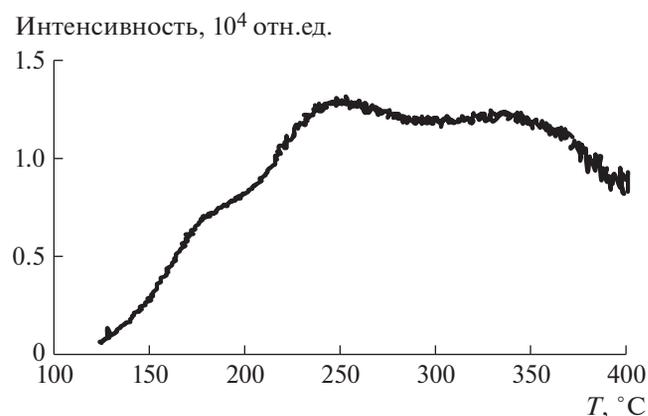
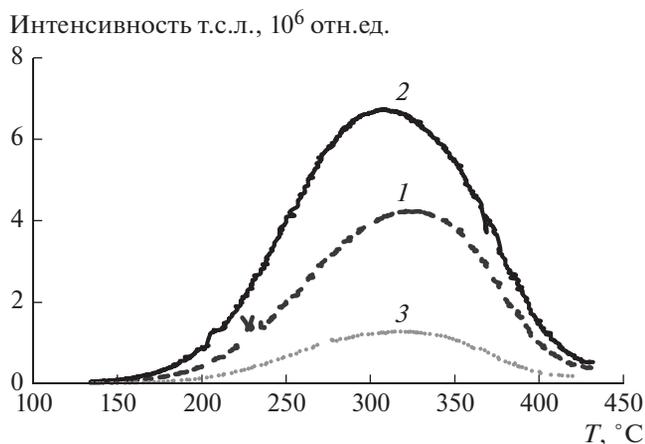


Рис. 6. Термостимулированная люминесценция детектора из керамики на основе  $\text{Al}_2\text{O}_3$  после резки лазером, вычтен фон, обусловленный тепловым свечением нагревательного элемента.

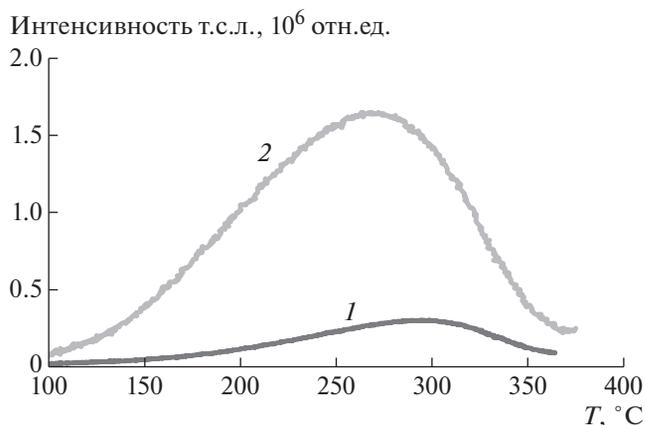


**Рис. 7.** Термостимулированная люминесценция детекторов из керамики AlN при скорости нагрева 3°C/с после резки лазером и последующей обработки им поверхности. 1 – т.с.л., измеренная со стороны, противоположной слою металлизации; 2 – т.с.л. детектора без слоя металлизации; 3 – т.с.л., измеренная через слой металлизации. Измерения выполнены через две недели после резки.

На рис. 7 приведена кривая т.с.л. детекторов, изготовленных лазерной резкой без последующего отжига. Резка лазером наводит очень интенсивный высокотемпературный сигнал т.с.л. После резки и дополнительной обработки лазером поверхности детектора на ней появляется тонкий слой металлизации.

На рис. 8 приведена кривая т.с.л. детекторов из керамики на основе AlN после отжига и облучения дозами 8 и 40 Гр. Анализ рисунка показывает, что выдерживается линейная зависимость сигнала т.с.л. от дозы облучения, но обращает на себя внимание сдвиг максимума т.с.л. Отличие условий проведения измерений состояло в том, что после облучения дозой 8 Гр измерения проводили через неделю, а после облучения дозой 40 Гр – на 5-й день после облучения. Зарегистрированный в эксперименте сдвиг максимума термолюминесценции может свидетельствовать о частичной потере информации детектором в процессе выдержки облученного детектора перед измерениями. О большом фединге т.с.л. материала AlN, легированного иттрием, сообщалось в работах [1, 2]. Очевидно, что кривая т.с.л. не элементарна, и потеря информации об облучении связана с сильным федингом ее низкотемпературной части.

Чувствительность к ионизирующему излучению керамики на основе AlN высокая: через неделю после облучения чувствительность была в 5 раз выше, чем у детектора ТЛД-К, и незначительно хуже, чем у материала детектора ТЛД-500. Сокращение интервала времени между облучением и началом измерений до нескольких минут позволяет увеличить сигнал т.с.л. детекторов из

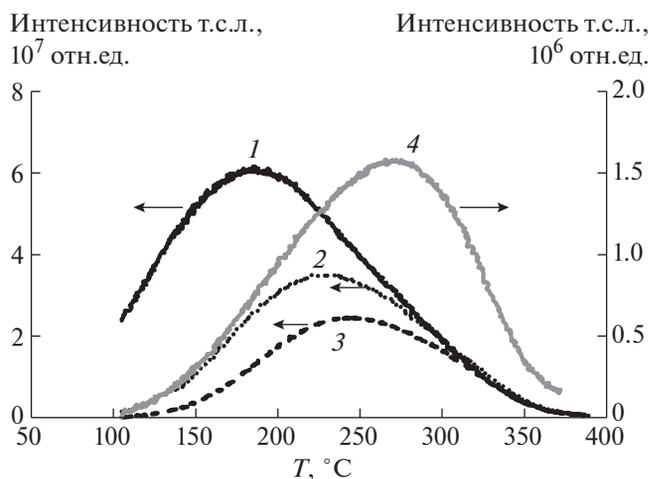


**Рис. 8.** Термостимулированная люминесценция детекторов из керамики на основе AlN, облученных дозами 8 (1) и 40 Гр (2). Скорость нагрева 2.67°C/с.

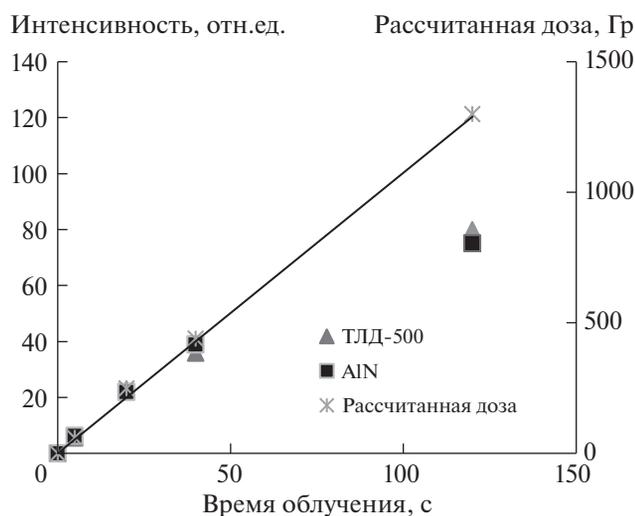
AlN в несколько раз. В этом случае уровень сигнала т.с.л. будет сравним с сигналом детектора ТЛД-500, масса которого в 5 раз больше. С учетом поправки на массу детекторов чувствительность керамики на основе AlN в 5 раз выше чувствительности материала детектора ТЛД-500.

Результаты проверки чувствительности детектора из керамики AlN к свету приведены на рис. 9. Здесь же приведен сигнал т.с.л. детектора AlN после облучения дозой 40 Гр.

Уровень максимального сигнала, регистрируемый в первые минуты после у.ф.-облучения (вероятно, близко к области насыщения), спадает в е



**Рис. 9.** Термостимулированная люминесценция детекторов из керамики на основе AlN после облучения светом и ионизирующим излучением. 1 – сразу после облучения светом; 2 – через день после облучения светом; 3 – через 3 дня после облучения светом; 4 – через 5 дней после облучения ионизирующим излучением дозой 40 Гр.



**Рис. 10.** Зависимости интенсивности сигнала т.с.л. детекторов на основе AlN и TLD-500 от времени у.ф.-облучения с пересчетом на соответствующее воздействие ионизирующей радиацией (рассчитанная доза).

раз в течение последующих шести дней со сдвигом максимума в высокотемпературную область почти на  $100^{\circ}\text{C}$ . Через равные промежутки времени после воздействий ионизирующего излучения и у.ф. термолюминесцентный сигнал от ионизирующего излучения в 10 раз меньше, чем при его насыщении у.ф.-облучением, что позволяет оценить эффективную дозу у.ф.-воздействия в  $\sim 400$  Гр. Интенсивности сигнала через равное время после облучения равным дозами хорошо воспроизводятся.

При изменении скорости нагрева интенсивность т.с.л. детектора из керамики AlN, как и детектора TLD-K (см. рис. 5), изменяется пропорционально скорости нагрева в диапазоне  $1\text{--}10^{\circ}\text{C}/\text{с}$ .

В связи с тем что характеристики т.с.л. керамики AlN после ионизирующего и у.ф.-воздействия идентичны, исследование дозовой зависимости осуществлялось при у.ф.-облучении и пересчитывалось на воздействие ионизирующего излучения. Оценки линейности сигналов т.с.л. детектора из керамики AlN и детектора TLD-500, также обладающего высокой чувствительностью к воздействию света, от времени у.ф.-облучения приведены на рис. 10.

Облучение проводилось на расстоянии 6 см от колбы лампы после ее прогрева в течение 5 мин, т.с.л. регистрировалась в течение первых нескольких минут после облучения. После облучения в течение 40 с (эффективная доза 400 Гр) у детектора TLD-500 наблюдается небольшое отклонение от линейности с дальнейшим выходом на насыщение. Для керамики AlN область линейности шире, с более выраженным выходом на насыщение при дозах  $\geq 600$  Гр.

Измерения проводили при скорости нагрева  $6.7^{\circ}\text{C}/\text{с}$ , стандартной для ДТУ-01. Получены практически идентичные зависимости для детекторов на основе керамики AlN и TLD-500 при отличии их масс в 5 раз.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ

Изученный нами серийно выпускаемый керамический материал AlN является чрезвычайно перспективным для использования в дозиметрии как ионизирующего, так и фотовоздействия. В обоих случаях после облучения наблюдается значительный фединг сигнала т.с.л. и сдвиг его максимума. Однако хорошая воспроизводимость сигнала после облучения позволяет осуществлять градуировку детектора с учетом фединга. При измерении в течение нескольких минут после облучения чувствительность керамики AlN к облучению как светом, так и ионизирующим излучением высокая и превосходит чувствительность материалов детектора TLD-500 в 5 раз, TLD-K — в 25 раз, а TLD-100 — в 80 раз. В течение недели после облучения происходит почти десятикратное падение сигнала т.с.л. за счет высвечивания низкотемпературной части пика, удельная чувствительность к радиации через несколько дней после облучения становится ниже чувствительности TLD-500, однако превосходит чувствительность TLD-K в 3.5 раза, а TLD-100  $\sim$  в 10 раз.

Несомненный интерес представляет металлизация поверхности, появляющаяся под действием лазерной обработки и свидетельствующая о создании при лазерном воздействии поверхностных дефектов в катионной подрешетке. Этот эффект может быть использован в качестве метки при контроле слабо проникающего излучения, когда важно фиксировать сторону облучения.

Люминесцентные характеристики нитрида алюминия подразумевают нетривиальный механизм его фотолюминесценции и т.с.л. с наличием в объекте зоны ловушек с близкими энергиями активации. Высока вероятность того, что это сложный молекулярный центр, обладающий колебательной структурой, с длительной релаксацией к наиболее стабильному состоянию. Таким центром, на наш взгляд, может быть молекулярный центр типа  $\text{MnO}_4^-$ , проявляющийся в фотолюминесценции.

Высокая чувствительность, хорошая воспроизводимость сигнала т.с.л. партии детекторов, изготовленных из одной серийной подложки, возможность многократного использования при стандартном отжиге, линейность дозового отклика в широком диапазоне доз делает материал стандартных керамических подложек весьма перспективным для дозиметрии высокодозных воздействий. Наличие сильного фединга накладывает

определенные ограничения на использование материала. Он не может быть применен для накопительного контроля фоновой радиации, но при соответствующей градуировке является отличным высокочувствительным детектором в случае необходимости быстрой оценки дозы после облучения. Высокая интенсивность и большая полуширина сигнала т.с.л. при измерении в течение нескольких минут после облучения обеспечивают высокий выход т.с.л.,  $\geq 10\%$ , что является рекордным для термолюминесценции, так как выходы т.с.л. наиболее чувствительных детекторов не превышают 1%. Высокий выход фотолюминесценции в микросекундном диапазоне в области 480–580 нм делает материал перспективным для изготовления светодиодов.

Исследованная керамика  $Al_2O_3$  характеризуется наличием нескольких пиков на кривой термолюминесценции и не очень высокой чувствительностью к свету и ионизирующему излучению. В связи с этим материал может быть перспективен в качестве подложки для тонкопленочных детекторов с возможностью использования (при проведении дополнительных исследований) в качестве детектора излучения в высокотемпературных полях.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Trinkler L., Botter-Jensen L., Christensen P., Berzina B.* // Rad. Meas. 2001. V. 33(5). P. 731. [https://doi.org/10.1016/S1350-4487\(01\)00093-2](https://doi.org/10.1016/S1350-4487(01)00093-2)
2. *Trinkler L., Berzina B., Kasjan D., Chen L.-Ch.* // Rad. Meas. 2008. V. 43. P. 231. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2007.12.025>
3. *Bi Z.X., Zheng Y.D., Zhang R., Gu S.L., Xiu X.Q., Zhou L.L., Shen B., Chen D.J., Shi Y.* // Journal of Materials Science: Materials in Electronics. 2004. № 15. P. 317. <https://doi.org/10.1023/B:JMSE.0000024233.82681.dc>
4. *Satoru Tanaka, Quanli Hu, Grishmanov V., Toshiaki Yoneoka* // Nucl. Instrum. and Methods. in Phys. Res. B. 1998. V. 141. P. 547.
5. *Akselrod M.S., Kortov V.S., Kravetsky D.J., Gotlib V.I.* // Radiat. Prot. Dosim. 1990. V. 32. № 1. P. 15.
6. *Кортков В.С., Никифоров С.В.* // Наносистемы, наноматериалы, нанотехнологии. 2011. Т. 9. № 1. С. 41.
7. *Кортков В.С., Ермаков А.Е., Зацепин А.Ф., Уймин М.А., Никифоров С.В., Мысик А.А., Гавико В.С.* // ФТТ. 2008. Т. 50. № 5. С. 916.
8. *Kortov V.S., Pustovarov V.A., Shtang T.V.* // Radiation Measurements. 2016. V. 85. P. 51. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2015.12.009>
9. *Алукер Н.Л., Суздальцева Я.М., Herrmann M.E., Дулепова А.С.* // ПТЭ. 2016. № 5. С. 115. <https://doi.org/10.7868/S0032816216050025>
10. *Алукер Н.Л., Артамонов А.С., Herrmann M.* // ПТЭ. 2021. № 3. С. 98. <https://doi.org/10.31857/S0032816221020269>
11. *Кортков В.С., Сюрдо А.И., Шарафутдинов Ф.Ф.* // ЖЭТФ. 1997. Т. 67. № 7. С. 72.
12. *Kostyukov A.I., Zhuzhgov A.V., Kaichev V.V., Rastorguev A.A., Snytnikov V.N.* // Optical Materials. 2018. V. 75. P. 757. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2017.11.040>
13. *Berezovskaya I.V., Khomenko O.V., Poletaev N.I., Khlebnikova M.E., Stoyanova I.V., Efrushina N.P., Dotsenko V.P.* // Functional Materials. 2018. V. 25. № 3. P. 490. <https://doi.org/10.15407/fm25.03.490>
14. *Kotomin E.A., Popov A.I.* // Nucl. Instrum. and Methods. in Phys. Res. 1998. V. 141. № 1–4. P. 1. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(98\)00079-2](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(98)00079-2)
15. *Novita M., Ogasawara K.* // Journal of the Physical Society of Japan. 2012. V. 81. P. 104709. <https://doi.org/10.1143/JPSJ.81.104709>
16. *Adachi S.* // J. Lumin. 2018. V. 202. P. 263. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2018.05.053>
17. *Xu Y., Wang L., Qu B., Li D., Lu J., Zhou R.* // J. Am. Ceram. Soc. 2019. V. 102. P. 2737. <https://doi.org/10.1111/jace.16155>
18. *Кулинкин А.Б., Феофилов С.В., Захарченя Р.И.* // ФТТ. 2000. Т. 42. Вып. 5. С. 835.
19. *Salek G., Devoti A., Lataste E., Demourgues A., Garcia A., Jubera V., Gaudon M.* // J. Lumin. 2016. V. 179. P. 189. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2016.07.004>