



МИР Физики и техники

С.В. Никифоров,
В.С. Кортюв

Радиационно–индуцированные
процессы в широкозонных
нестехиометрических
оксидных диэлектриках

ТЕХНОСФЕРА
Москва
2017

УДК 539.21: 535.37
ББК 22.379: 22.345
Н63

Н63 Никифоров С.В., Кортов В.С.

**Радиационно-индуцированные процессы в широкозонных
нестехиометрических оксидных диэлектриках**
Москва: ТЕХНОСФЕРА, 2017. – 272 с. ISBN 978-5-94836-490-2

В книге рассмотрены радиационно-индуцированные процессы, возникающие при взаимодействии ионизирующих излучений с веществом, положенные в основу дозиметрических измерений. Особое внимание уделено методам твердотельной дозиметрии на основе термостимулированной люминесценции. Описаны механизмы образования анионных дефектов в объемных и наноструктурных широкозонных оксидных диэлектриках, проведено сравнение их люминесцентных и дозиметрических свойств. Приведен обзор и анализ различных типов кинетических моделей термостимулированной люминесценции, в том числе основанных на конкурирующем влиянии глубоких ловушек. Описаны эффекты сенситизации люминесценции в широкозонных оксидах, обусловленные изменением заселенности глубоких центров. Представлены результаты, доказывающие решающую роль процессов температурно-зависимого захвата носителей заряда глубокими ловушками в формировании люминесцентных и дозиметрических свойств данного класса материалов. Приводятся сведения о дозиметрических характеристиках и применении термолюминесцентных детекторов ионизирующих излучений ТЛД-500К на основе анион-дефектного оксида алюминия.

Книга адресована широкому кругу читателей – специалистам по физике конденсированного состояния, радиационной физике диэлектрических материалов, инженерам, работающим в области индивидуальной, медицинской и технологической дозиметрии и радиационного мониторинга. Она может быть также полезна аспирантам и студентам старших курсов.

УДК 539.21: 535.37
ББК 22.379: 22.345

© 2017, С.В. Никифоров, В.С. Кортов
© 2017, АО «РИЦ «ТЕХНОСФЕРА», оригинал-макет, оформление

ISBN 978-5-94836-490-2

СОДЕРЖАНИЕ

Предисловие	6
Сведения об авторах	10
Список основных сокращений и обозначений	11
Глава 1. Дозовые эффекты в конденсированных средах под действием излучений	12
1.1. Первичные процессы.	12
1.2. Вторичные процессы.	20
Глава 2. Методы радиационных измерений	29
2.1. Измерения мощности дозы	29
2.1.1. Полупроводниковые детекторы.	29
2.1.2. Сцинтилляционные детекторы	34
2.2. Измерения поглощенной дозы.	37
2.2.1. Калориметрический метод	37
2.2.2. ЭПР-дозиметрия.	38
2.2.3. Люминесцентная дозиметрия	41
ТСЛ- и ОСЛ-дозиметрия	41
Радиофотолюминесцентная дозиметрия	58
2.2.4. ТСЭЭ-дозиметрия	60
Глава 3. Кинетические модели термостимулированной люминесценции.	62
3.1. Зонная схема обобщенной модели ТСЛ в широкозонных материалах	63
3.2. Дифференциальные кинетические уравнения	64
3.3. Общие подходы к решению систем кинетических уравнений	67
3.4. Кинетические параметры	69
3.5. Краткий обзор основных типов кинетических моделей ТСЛ	71
3.6. Кинетические модели ТСЛ с учетом конкурирующего влияния глубоких ловушек	73
3.6.1. Модель конкурирующих электронных ловушек	73
3.6.2. Модель конкурирующих центров рекомбинации	79
3.6.3. Модель одновременной конкуренции между электронными ловушками и центрами рекомбинации.	82
Глава 4. Люминесцентные свойства нестехиометрических оксидных диэлектриков.	86
4.1. Способы создания анионных дефектов в оксидах	87
4.2. Центры люминесценции в анион-дефектных монокристаллах оксида алюминия	89

- 4.3. Люминесцирующие керамики оксидов алюминия, циркония и магния 96
- 4.3.1. Анион-дефектная ультрадисперсная керамика оксида алюминия. 96
- 4.3.2. Наноструктурный моноклинный диоксид циркония . . . 102
- 4.3.3. Ультрадисперсная керамика оксида магния 105
- 4.4. Глубокие ловушки в широкозонных оксидах 111

Глава 5. Эффекты сенситизации и десенситизации термолюминесценции в облученных оксидных диэлектриках. 114

- 5.1. Высокотемпературная ТСЛ в анион-дефектном оксиде алюминия после возбуждения различными видами излучений 115
- 5.1.1. УФ-облучение. 115
- 5.1.2. Рентгеновское излучение. 120
- 5.1.3. Импульсный электронный пучок. 121
- 5.2. Влияние заселенности глубоких ловушек на ТСЛ дозиметрического пика в оксиде алюминия 123
- 5.2.1. Сенситизация ТСЛ после заполнения глубоких ловушек при постоянной температуре. 124
- 5.2.2. Сенситизация ТСЛ после ступенчатого заполнения и опустошения глубоких ловушек при разных температурах. 127
- Заполнение глубоких ловушек УФ-излучением 128
- Заполнение глубоких ловушек рентгеновским излучением 129
- Заполнение глубоких ловушек импульсным электронным пучком. 130
- 5.3. Электронные и дырочные глубокие центры захвата в анион-дефектном оксиде алюминия. 132
- 5.4. Роль дырочных ловушек в ТСЛ дозиметрического пика в АДК оксида алюминия 137
- 5.5. Сенситизация ТСЛ мелких ловушек в АДК оксида алюминия 146
- 5.6. ТСЛ глубоких ловушек и сенситизация в анион-дефектном оксиде магния 152

Глава 6. Температурная зависимость процессов конкурирующего взаимодействия ловушек в облученных широкозонных оксидах 158

- 6.1. Температурная зависимость вероятности захвата носителей заряда на глубокие центры в модели конкурирующих электронных ловушек 158
- 6.2. Тушение ТСЛ в дозиметрическом пике оксида алюминия . . . 161
- 6.2.1. Радиационно окрашенные монокристаллы 161
- 6.2.2. Ультрадисперсная анион-дефектная керамика 163
- 6.3. Тушение ТСЛ глубоких ловушек 164
- 6.4. Особенности фототрансферной термолюминесценции 170

6.5. Роль глубоких ловушек в формировании сверхлинейности дозовой зависимости ТСЛ	174
6.5.1. Результаты эксперимента	175
6.5.2. Результаты расчета	177
6.6. Температурная ионизация F-центров в анион-дефектном оксиде алюминия	181
6.6.1. Экспериментальные подтверждения термической ионизации F-центров	182
6.6.2. Зонная схема и математическое описание модели	184
6.6.3. Результаты моделирования	188
Температурная зависимость заполнения ловушек	188
Температурное тушение люминесценции.	189
6.7. Безызлучательная релаксация электронных возбуждений в моноклинном диоксиде циркония.	190
6.7.1. Зависимость квантового выхода ФЛ от температуры	192
6.7.2. ТСЛ наноструктурного диоксида циркония и ее кинетические параметры.	193
6.7.3. Влияние скорости нагрева на светосумму ТСЛ наноструктурного диоксида циркония.	195
6.7.4. Физическая интерпретация механизма и параметров температурного тушения люминесценции	198
Глава 7. Применение детекторов ТЛД-500К на основе анион-дефектного оксида алюминия в люминесцентной дозиметрии ионизирующих излучений	202
7.1. Индивидуальная дозиметрия	203
7.2. Высокодозные измерения	209
7.3. Модификация дозиметрических свойств детекторов.	215
7.3.1. Термооптическая обработка	215
7.3.2. Повторное измерение дозиметрического ТСЛ-сигнала.	218
7.3.3. Термолучевая подготовка детекторов к экспозициям	220
7.3.4. Методика измерения дозы тепловых нейтронов и смешанных полей	222
Литература.	227
Предметный указатель	260

ПРЕДИСЛОВИЕ

Интерес к изучению радиационно-индуцированных процессов в диэлектриках на основе нестехиометрических широкозонных оксидов обусловлен тем, что они являются перспективными материалами для регистрации и измерения параметров радиационных излучений, широко используемых в настоящее время в науке и технике, люминесцентными методами. Особенностью данного класса материалов является тот факт, что их люминесцентные свойства главным образом определяются не примесными, а собственными дефектами кристаллической структуры, образованными кислородными вакансиями. Данная особенность вместе с большой шириной запрещенной зоны обеспечивает высокую эффективность запасаения и длительность хранения информации о радиационном воздействии и обуславливает высокий выход люминесценции этих материалов.

В монографии изложены основные физические эффекты, возникающие при взаимодействии ионизирующих излучений с веществом, положенные в основу твердотельных методов дозиметрии (вспышки люминесценции, индуцированная проводимость, выделение тепла). Отдельно рассматриваются явления, обусловленные локализацией свободных носителей заряда на дефектных центрах (люминесценция, стимулируемая различными факторами, оптическое поглощение, электронный парамагнитный резонанс (ЭПР)). Анализируются особенности люминесценции в нестехиометрических оксидах, связанные с высокой концентрацией дефектов в анионной подрешетке. Рассмотрены термохимические и радиационные механизмы образования анионных дефектов в объемных и наноструктурных оксидах алюминия, магния и циркония, а также их влияние на радиационно-оптические и люминесцентные свойства. Представлены результаты, доказывающие решающую роль процессов конкуренции в захвате носителей заряда глубокими ловушками в формировании люминесцентных и дозиметрических свойств данного класса материалов. Эти результаты являются базой для разработки научных основ целенаправленного управления люминесцентными свойствами оксидных материалов и создают научные предпосылки для их направленной модификации

и расширения функциональных возможностей. Рассматриваются предложенные авторами на основе установленных закономерностей способы улучшения дозиметрических свойств и оптимизации эксплуатации термолюминесцентных детекторов излучений на основе исследуемых материалов.

Монография предназначена для широкого круга читателей — специалистов по физике конденсированного состояния, радиационной физике диэлектрических материалов, инженеров, работающих в области индивидуальной, медицинской и технологической дозиметрии и радиационного мониторинга. Она может быть полезна аспирантам и студентам старших курсов, обучающимся по направлениям, связанным с физикой твердого тела и материаловедением. Следует отметить, что, хотя и имеются современные монографии и учебники, посвященные проблемам радиационной физики и дозиметрии, издания на русском языке, посвященные радиационно-индуцированным явлениям в оксидных материалах и их применению в люминесцентной дозиметрии, отсутствуют или малодоступны широкому кругу читателей.

Первая глава посвящена обзору первичных процессов взаимодействия различных видов ионизирующих излучений с веществом. Рассматриваются также вторичные процессы преобразования энергии в облученных широкозонных диэлектриках, приводящие к конечным физическим эффектам, используемым в твердотельной дозиметрии.

Вторая глава представляет собой обзор методов радиационных измерений и используемых в твердотельной дозиметрии детекторов ионизирующих излучений. Приводятся физические принципы работы, параметры и характеристики полупроводниковых, сцинтилляционных, калориметрических, ЭПР и ряда других типов радиационных детекторов для измерения мощности дозы и накопленной дозы. Отдельно обсуждаются люминесцентные методы регистрации излучений, в частности, метод термостимулированной люминесценции (ТСЛ) и оптически стимулированной люминесценции (ОСЛ).

Третья глава посвящена рассмотрению теоретических основ эффекта ТСЛ. Приводятся основные сведения об известных моделях ТСЛ, в частности учитывающих перенос заряда в условиях конкурирующего взаимодействия между локализованными состояниями в рамках подхода, основанного на анализе кинетики люми-

несценции. Проведено также обобщение известных закономерностей влияния глубоких центров на люминесцентные свойства широкозонных материалов на основе экспериментальных и расчетных данных.

В четвертой главе рассматриваются способы образования и радиационно-оптические свойства активных центров, созданных собственными и примесными дефектами в широкозонных оксидах. Приведены результаты идентификации данных дефектов в монокристаллических и наноструктурных образцах оксидов алюминия, магния и циркония методами люминесцентной и оптической спектроскопии. Отмечается определяющее влияние центров F-типа, связанных с кислородными вакансиями в разных зарядовых состояниях, на спектрально-люминесцентные свойства изучаемых образцов.

В пятой главе приводятся результаты изучения влияния степени заселенности глубоких центров на выход люминесценции в широкозонных оксидах, который определяет их дозиметрическую чувствительность. Классифицированы глубокие ловушки в анион-дефектном оксиде алюминия, установлена их связь с температурными диапазонами конкретных пиков ТСЛ, обоснована их электронная или дырочная природа. Описаны общие закономерности изменения выхода ТСЛ анион-дефектных оксидов алюминия и магния при вариации заселенности глубоких центров захвата. Приведены экспериментальные доказательства универсальности механизмов конкурирующего взаимодействия ловушек различных типов в широкозонных оксидных диэлектриках.

Шестая глава посвящена экспериментальным доказательствам температурной зависимости эффективности конкуренции в захвате носителей заряда между основными и глубокими ловушками на стадии термостимуляции облученных кристаллов анион-дефектного оксида алюминия. Иллюстрируется определяющая роль этого процесса в формировании эффекта температурного тушения люминесценции, зависимости выхода люминесценции, степени сенсибилизации и сверхлинейности дозовой характеристики от скорости нагрева образцов. Отмечено, что рост эффективности конкурирующего взаимодействия с температурой является общей закономерностью для ловушек различной энергетической глубины. Установлено, что причиной температурного тушения в оксидах алюминия и циркония является процесс термической иони-

зации возбужденных состояний F-центров, обуславливающий температурную зависимость вероятности захвата на глубокие ловушки.

В седьмой главе приводятся дозиметрические характеристики термолюминесцентных детекторов ионизирующих излучений ТЛД-500К на основе анион-дефектных кристаллов оксида алюминия. Рассматривается их применение для индивидуальной и высокодозной дозиметрии. Обосновывается принципиальная возможность использования ультрадисперсных керамик оксида алюминия в качестве высокодозных детекторов импульсных электронных пучков в диапазоне доз 1–100 кГр. Описываются предложенные авторами и защищенные патентами РФ способы модификации свойств и расширения функциональных возможностей детекторов ТЛД-500К, основанные на результатах исследования влияния заселенности глубоких центров на люминесцентные свойства анион-дефектных кристаллов Al_2O_3 .

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

Никифоров Сергей Владимирович —

доктор физико-математических наук, доцент кафедры «Физические методы и приборы контроля качества» Уральского федерального университета (г. Екатеринбург). В 2016 г. защитил докторскую диссертацию по теме «Процессы переноса зарядов и люминесценция анион-дефектных оксидов с глубокими ловушками». Область научных интересов — радиационная физика конденсированного состояния, люминесцентная дозиметрия, математическое моделирование релаксационных процессов в облученных диэлектриках. Автор более 50 научных работ в ведущих зарубежных и российских журналах и пяти учебных пособий. Многократный участник международных научных конференций по люминесцентным детекторам ионизирующих излучений и твердотельной дозиметрии. В 2007–2016 гг. являлся членом международной организации по твердотельной дозиметрии (International Solid State Dosimetry Organization).

Кортов Всеволод Семенович —

доктор технических наук, профессор кафедры «Физические методы и приборы контроля качества» Уральского федерального университета (г. Екатеринбург), заслуженный деятель науки РФ. Область научных интересов — радиационная физика твердого тела, термолюминесцентные детекторы ионизирующих излучений, радиационные измерения, высокодозная дозиметрия, в том числе при радиационных авариях (Чернобыль, Фукусима). Член Президиума Научного совета РАН по радиационной физике твердого тела, заслуженный работник атомной отрасли. Подготовил 35 кандидатов и 5 докторов физико-математических наук по радиационной физике и твердотельной дозиметрии. Автор более 350 статей в ведущих зарубежных и российских журналах. Член оргкомитетов многочисленных международных конференций по радиационным дефектам, люминесцентным детекторам ионизирующих излучений и радиационному мониторингу.

Авторы выражают благодарность студенту-магистранту кафедры «Физические методы и приборы контроля качества» Авдюшину Ивану Германовичу за помощь в подготовке рисунков и оформлении рукописи.

СПИСОК ОСНОВНЫХ СОКРАЩЕНИЙ И ОБОЗНАЧЕНИЙ

АДК	– анион-дефектный кристалл
ВЗ	– валентная зона
ЗП	– зона проводимости
ИКЛ	– импульсная катодолюминесценция
КТВ	– кривая термовысвечивания
ЛПЭ	– линейная передача энергии
ОП	– оптическое поглощение
ОСЛ	– оптически стимулированная люминесценция
РЛ	– радиолюминесценция
РФЛ	– радиофотолюминесценция
СЭМ	– сканирующий электронный микроскоп
ТЛД	– термолюминесцентная дозиметрия
ТСЛ	– термостимулированная люминесценция
ТСП	– термостимулированная проводимость
ТСЭЭ	– термостимулированная экзоэлектронная эмиссия
УФ	– ультрафиолет
ФЛ	– фотолюминесценция
ФТВ	– фракционное термовысвечивание
ФТСЛ	– фототермостимулированная люминесценция
ФТТЛ	– фототрансферная термолюминесценция
ФЭУ	– фотоэлектронный умножитель
ЩГК	– щелочно-галоидные кристаллы
ЭПР	– электронный парамагнитный резонанс
FOM	– «figure of merit»

ГЛАВА I

ДОЗОВЫЕ ЭФФЕКТЫ В КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕДАХ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ИЗЛУЧЕНИЙ

При воздействии радиации на вещество в нем происходят различные процессы преобразования энергии ионизирующего излучения, которые носят сложный многостадийный характер. Их можно разделить на две группы: первичные и вторичные. Результатом первичных процессов передачи энергии является ионизация и возбуждение атомов облучаемого материала. Вторичные процессы приводят к возникновению так называемых конечных радиационных эффектов в твердых телах, которые используются в науке и технике, в частности — для оценки поглощенной материалом дозы излучения.

1.1. Первичные процессы

Первичные процессы взаимодействия ионизирующих излучений с веществом подробно рассматриваются в целом ряде отечественных и зарубежных монографий и учебных пособий [1–9]. В настоящей работе приводится краткий обзор их основных закономерностей. При анализе воздействия радиации на вещество следует разделять все виды излучений на две группы: непосредственно и косвенно ионизирующие излучения.

К непосредственно ионизирующим относятся излучения, представляющие собой потоки заряженных частиц (электронов, протонов, альфа-частиц, ионов). Взаимодействие данных излучений с веществом происходит благодаря кулоновским силам, возникающим между заряженными частицами и электронами атомов среды. В результате такого взаимодействия заряженная частица передает электронной подсистеме вещества некоторую энергию, приводящую к ионизации и возбуждению атомов. Возникающие

в результате ионизации электроны могут иметь кинетическую энергию, достаточную для ионизации других атомов вещества, с образованием вторичных электронов. Такие высокоэнергичные электроны называются дельта-электронами. При ионизации внутренних электронных оболочек атомов облучаемого вещества образующиеся вакансии электронов могут заполняться за счет электронных переходов с внешних оболочек. Выделяемая при этом энергия преобразуется в кванты рентгеновского характеристического излучения либо передается другому электрону из внешних оболочек (оже-электрону), который, обладая кинетической энергией, может покинуть атом и стать свободным.

Ионизационные потери энергии заряженной частицы в веществе (dE/dx) описываются известными формулами Бете—Блоха [1]. Для тяжелых заряженных частиц:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 Z_1^2}{mv^2} n_A Z_2 \ln \frac{2mv^2}{\bar{w}}. \quad (1.1)$$

Для электронов:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 n_A Z_2}{mv^2} \ln \frac{1,16mv^2}{2\bar{w}}. \quad (1.2)$$

В этих формулах E — кинетическая энергия частицы, Z_1 — ее заряд, e — заряд электрона, Z_2 — атомный номер вещества-поглотителя, n_A — число атомов в 1 см^3 этого вещества, m — масса покоя электрона, v — скорость частицы, \bar{w} — средняя энергия возбуждения атома. Анализ формул (1.1) и (1.2) показывает, что ионизационные потери пропорциональны числу электронов в единице объема материала поглотителя, его плотности и квадрату величины заряда частицы и обратно пропорциональны квадрату ее скорости. С уменьшением скорости частицы ионизационные потери возрастают вследствие увеличения времени пребывания частицы вблизи каждого отдельного атома среды, что приводит к росту вероятности ионизации. Изменение ионизационных потерь со скоростью обуславливает их зависимость от энергии частицы, которая носит немонотонный характер. С ростом энергии потери падают, достигая минимума, и далее медленно возрастают по логарифмическому закону. В конденсированных средах этот рост незначителен и составляет несколько процентов. Зависимость удельных ионизационных потерь от энергии частицы приводит к изменению этих



Рис. 1.1. Кривая Брэгга

потерь на длине пробега, поскольку, двигаясь в веществе, частица теряет энергию. Последняя закономерность описывается известной кривой Брэгга (рис. 1.1), которая иллюстрирует, что основной ионизационный эффект заряженная частица производит в конце своего пробега. При одинаковой энергии ионизационные потери будут также зависеть от массы заряженной частицы. В частности, удельные потери энергии электронов, как правило, ниже, чем протонов при одинаковой энергии, поскольку при заданной энергии электроны имеют большую скорость за счет меньшей массы. В свою очередь, удельные ионизационные потери энергии протонов примерно на порядок меньше, чем альфа-частиц той же энергии.

Помимо ионизации и возбуждения, поглощение энергии заряженных частиц вызывает появление и других эффектов. Ускоренное движение заряженной частицы в кулоновском поле атомных электронов и ядер приводит к возникновению тормозного рентгеновского излучения. При этом заряженная частица теряет свою энергию и замедляется. Потери энергии ионизирующей радиации на тормозное излучение называются радиационными потерями. Удельные радиационные потери обратно пропорциональны квад-

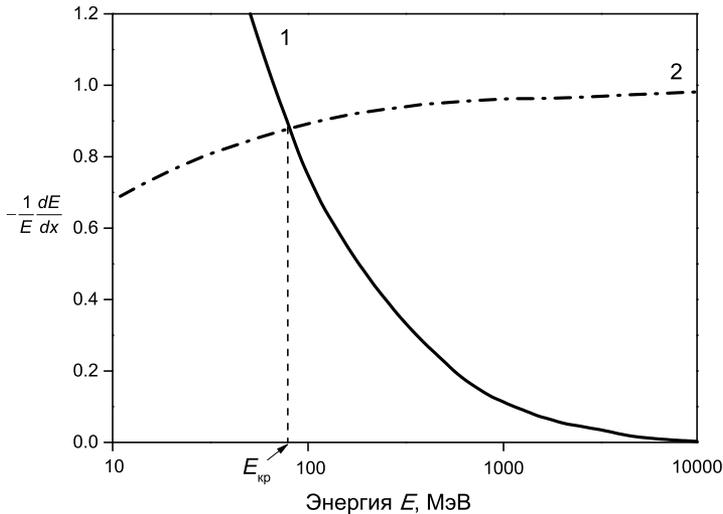


Рис. 1.2. Зависимости ионизационных (1) и радиационных (2) потерь от энергии электрона в воде [3]. $E_{кр}$ — критическая энергия

рату массы частицы, поэтому они играют существенную роль только для легких заряженных частиц (электронов, позитронов). Они также зависят от энергии частиц и порядкового номера химического элемента материала поглощающей среды. С увеличением энергии заряженной частицы удельные радиационные потери возрастают и при энергии, выше критической, могут превышать удельные ионизационные потери. Пример зависимостей различных видов потерь от энергии для электронов в воде приведен на рис. 1.2.

Следует отметить, что при облучении материала заряженными частицами на ионизацию и возбуждение расходуется более 99% энергии излучения. Менее 1% энергии передается атомам среды в результате упругих столкновений, что может вызывать смещение атомов из узлов кристаллической решетки. В итоге этот процесс приводит к образованию радиационных дефектов (вакансий и междоузельных атомов). Закономерности и механизмы радиационного дефектообразования будут рассмотрены в следующем разделе.

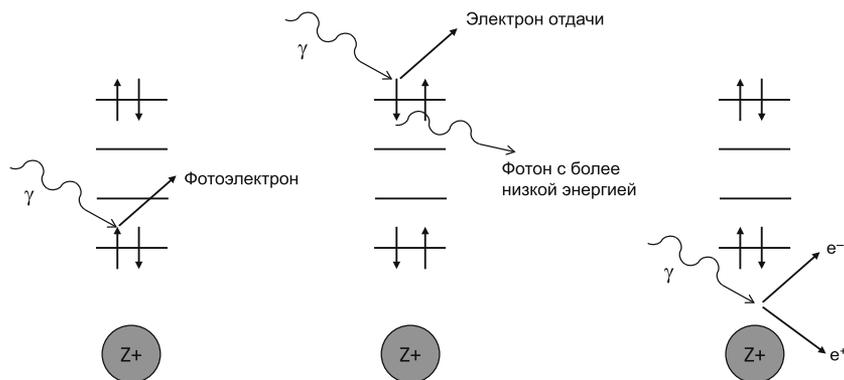


Рис. 1.3. Схематическое представление эффектов взаимодействия фотонных излучений с веществом [4]

К косвенно ионизирующим излучениям относят излучения нейтральных (незаряженных) частиц: фотонов (рентгеновское и гамма-излучение), а также нейтронов различных энергий. В отличие от заряженных частиц, нейтральные частицы не могут приводить к ионизации материала путем непосредственного взаимодействия с атомами вещества. Они индуцируют процессы ионизации и возбуждения только косвенно посредством действия создаваемых в веществе вторичных заряженных частиц.

Рентгеновское и гамма-излучение при взаимодействии со средой формируют вторичные электроны с помощью трех механизмов: фотоэффекта, эффекта Комптона и образования электронно-позитронных пар (рис. 1.3). При фотоэффекте происходит такое взаимодействие фотона с веществом, при котором квант излучения полностью поглощается и исчезает. Часть энергии кванта излучения расходуется на разрыв связи электрона с ядром атома, другая часть преобразуется в кинетическую энергию испускаемого атомом электрона. Фотоэффект в основном происходит с участием электронов внутренних (K и L) оболочек атомов. При этом их освободившиеся места могут занять электроны внешних оболочек. Выделившаяся в результате такого процесса энергия преобразуется в характеристическое рентгеновское излучение или передается оже-электронам. Для слабосвязанных электронов внешних оболочек происходит рассеяние квантов рентгеновского и гамма-излу-

чения (Комптон-эффект), при котором часть энергии падающего фотона преобразуется в кинетическую энергию электрона отдачи, другую часть уносит рассеянный фотон, длина волны которого больше длины волны падающего фотона. Гамма-квант может также образовать пару частиц (электрон и позитрон), если энергия фотона превышает удвоенную энергию покоя электрона (1.02 МэВ). Фотоэлектроны, комптоновские электроны и электронно-позитронные пары, обладая электрическим зарядом, могут вызывать ионизацию и возбуждение атомов облучаемого материала, как это было описано ранее для непосредственно ионизирующих излучений.

Ослабление рентгеновского и гамма-излучения в веществе подчиняется экспоненциальному закону:

$$J(x) = J_0 e^{-\mu x}, \quad (1.3)$$

где J – поток фотонов, x – расстояние, μ – линейный коэффициент поглощения, который учитывает все три упомянутых выше механизма потери энергии фотонов. Суммарный линейный коэффициент поглощения гамма- и рентгеновского излучения возрастает с увеличением плотности вещества поглотителя, а также зависит от энергии квантов и порядкового номера атомов поглощающей среды. Закономерности влияния на коэффициент поглощения последних двух факторов несколько различаются в зависимости от механизмов взаимодействия фотонов с веществом. Коэффициент поглощения в результате фотоэффекта резко уменьшается с ростом энергии квантов и возрастает пропорционально Z^5 , где Z – атомный номер вещества поглощающей среды [4]. Коэффициент поглощения в результате комптон-эффекта также падает с ростом энергии излучения, но более медленно. Он прямо пропорционален атомному номеру вещества. Коэффициент поглощения в результате образования электрон-позитронных пар пропорционален Z^2 и растет с повышением энергии квантов, начиная с 1.02 МэВ. Учитывая вышеизложенное, можно проанализировать соотношение эффективностей протекания трех эффектов взаимодействия фотонного излучения с веществом в зависимости от энергии квантов и массы (порядкового номера) атомов поглощающей среды (рис. 1.4). Фотоэффект является доминирующим механизмом в тяжелых элементах при малой энергии излучения. Для легких веществ будет преобладать комптоновское рассеяние фотонов в очень широком диапазоне

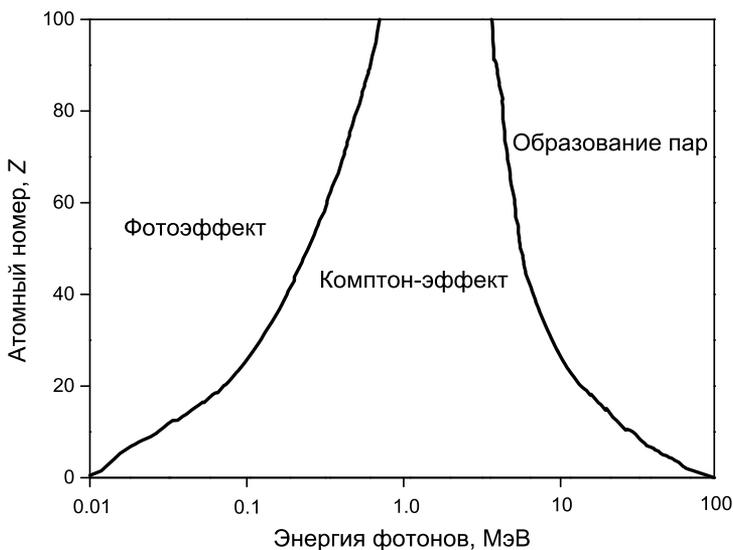


Рис. 1.4. Области преобладания различных эффектов взаимодействия фотонных излучений с веществом

энергий. Для высокоэнергетических фотонов и тяжелых поглощающих веществ наиболее значительную роль будет играть эффект образования электрон-позитронных пар. В зависимости от атомного номера элемента суммарный линейный коэффициент поглощения может монотонно убывать с ростом энергии фотонов (например, для алюминия) либо изменяться сложным образом, уменьшаясь до некоторого минимума, а затем увеличиваясь. Такая зависимость характерна, в частности, для свинца, являющегося основным материалом для защиты от гамма-излучения. Точка минимума его коэффициента поглощения наблюдается при энергии гамма-квантов 3 МэВ [1].

Нейтроны, как и фотоны, не имеют электрического заряда, поэтому относятся к косвенно ионизирующим излучениям. Они теряют свою энергию в поглощающих веществах в результате взаимодействия с атомными ядрами. В результате ядерных реакций могут образовываться заряженные частицы: протоны (p), альфа-частицы (α), осколки деления (f), которые приводят к иониза-

ции и возбуждению атомов. Эффективные сечения ядерных реакций зависят от энергии нейтронов и особенно велики для тепловых нейтронов. Наиболее важными для дозиметрии являются (n,p)-реакции тепловых нейтронов с атомами ${}^3\text{He}$, ${}^{14}\text{N}$ и (n, α)-реакции с участием изотопов ${}^6\text{Li}$, ${}^{10}\text{B}$ [5]. К характерным реакциям при взаимодействии тепловых нейтронов с веществом относятся также реакции радиационного захвата (n, γ), в результате которых образуется косвенно ионизирующее гамма-излучение. Примером (n, γ)-реакции является взаимодействие тепловых нейтронов с ядрами ${}^{113}\text{Cd}$, характеризующееся высоким эффективным сечением (25 000 барн), а также реакция ${}^{157}\text{Gd}(n,\gamma){}^{158}\text{Gd}$ [1, 10]. Быстрые нейтроны взаимодействуют с облучаемым материалом в основном за счет упругого рассеяния, при котором поглощенная энергия распределяется между ядрами отдачи и испущенным нейтроном меньшей энергии. Наиболее эффективно процессы упругого рассеяния быстрых нейтронов происходят в водородсодержащих материалах. При этом образуются протоны отдачи, а падающие нейтроны замедляются и становятся тепловыми. При упругом рассеянии нейтронов большой энергии может наблюдаться смещение атомов среды из равновесных положений, что, как и в случае заряженных частиц, приводит к генерации радиационных дефектов.

С учетом описанных выше закономерностей и механизмов взаимодействия радиации с веществом можно провести сопоставление поглощательной способности различных видов излучений. При одинаковых энергиях наименьшей глубиной проникновения обладают тяжелые заряженные частицы из-за их большой массы. Электроны, имея меньшую массу, вследствие больших скоростей при равных с тяжелыми частицами энергиях взаимодействуют с веществом слабее и характеризуются большей величиной пробега. Рентгеновское и гамма-излучение благодаря нулевому заряду и массе покоя фотонов имеют невысокие коэффициенты поглощения и характеризуются высокой проникающей способностью. В частности, глубина проникновения рентгеновских лучей в твердых телах составляет от долей миллиметра до десятков сантиметров в зависимости от энергии квантов [11]. Максимальным пробегом в твердых телах обладают нейтронные излучения, поскольку они взаимодействуют не с электронной, а с ядерной подсистемой материала.

Основной характеристикой поглощательной способности излучения является линейная передача энергии (ЛПЭ). Эта величина представляет собой количество энергии ионизирующего излучения, поглощенного веществом, за длину пробега частицы (в кэВ/мкм). Величина ЛПЭ является важной при анализе биологических эффектов ионизирующего излучения. Значения ЛПЭ в воде для разных типов излучения приведены в табл. 1.1. Из данных табл. 1.1, в частности, следует, что ЛПЭ особенно велика для тяжелых заряженных частиц, что вызывает пространственную неоднородность распределения потерь энергии падающей частицы, а также определяет высокую плотность возбужденных состояний вдоль траектории их движения, что приводит к образованию треков в облученном материале. Кроме того, такие же высокие плотности ионизации и возбуждения могут быть достигнуты при облучении материала импульсными источниками радиации высокой мощности.

Таблица 1.1. Величина ЛПЭ в воде для различных видов излучения [4]

Излучение	ЛПЭ, кэВ/мкм
Гамма-излучение (^{60}Co) (1.17 и 1.33 МэВ)	0.22
Рентгеновское излучение (200 кэВ)	1.7
Рентгеновское излучение (50 кэВ)	6.3
Электроны (бета-излучение) (1–2 МэВ)	0.2
Электроны (10 кэВ)	0.3
Электроны (100 эВ)	20
Протоны (10 МэВ)	4.7
Альфа-частицы (5 МэВ)	40
Осколки деления тяжелых ядер (100 МэВ)	1800

1.2. Вторичные процессы

В результате рассмотренных ранее первичных процессов взаимодействия ионизирующего излучения с веществом в облученном материале образуются свободные электроны. Эти электроны вызывают в твердых телах целый ряд вторичных процессов, в ходе

которых происходит преобразование энергии падающего излучения в различные формы (фотоны, фононы, радиационные дефекты и т.д.).

Среди материалов на основе конденсированных сред наиболее полно все каналы протекания вторичных процессов реализуются в диэлектриках. Общая схема вторичных процессов в диэлектрических материалах при поглощении ионизирующего излучения и вызываемых ими конечных эффектов приведена на рис. 1.5. Для построения этой схемы авторами использовались данные работ [12, 13]. Образовавшиеся в диэлектрике под действием падающего излучения вторичные электроны, как и первичное излучение, могут передавать энергию атомам среды. Потери энергии первичных и размножение вторичных частиц происходит до тех пор, пока их энергия не станет меньше необходимой для ионизации (возбуждения). В конечном счете в облученном диэлектрике образуются возбужденные состояния (так называемые электронные возбуждения). При передаче энергии атомам среды может происходить переход электрона с одного из уровней в валентной зоне в зону проводимости. В результате в диэлектрике за короткое время (10^{-15} – 10^{-14} с) создается множество электронно-дырочных пар. При этом электроны и дырки имеют некоторую избыточную энергию (порядка $3E_g$, где E_g – ширина запрещенной зоны материала) и называются горячими. Горячие электроны и дырки теряют свою энергию путем испускания фононов или при неупругом рассеянии на электронах с генерацией новых электронных возбуждений.

Было предложено несколько моделей, описывающих процессы потери энергии горячими электронами и дырками [14]. Наиболее ранней является простая феноменологическая модель, рассматривающая лавинный процесс создания электронно-дырочных пар [15]. Этот процесс происходит до тех пор, пока энергия электрона не становится меньше некоторой пороговой величины, определяющейся главным образом шириной запрещенной зоны материала. В более сложной плазменной модели [16] горячие электроны в твердом теле теряют избыточную энергию в основном через плазмоны, которые представляют собой кванты коллективных колебаний валентных электронов (плазменных колебаний). Присутствие плазмонов доказывается измерением энергетического спектра электронов, прошедших через тонкую пленку диэлектрического материала [17, 18]. Полученный спектр состоит из серии эквиди-

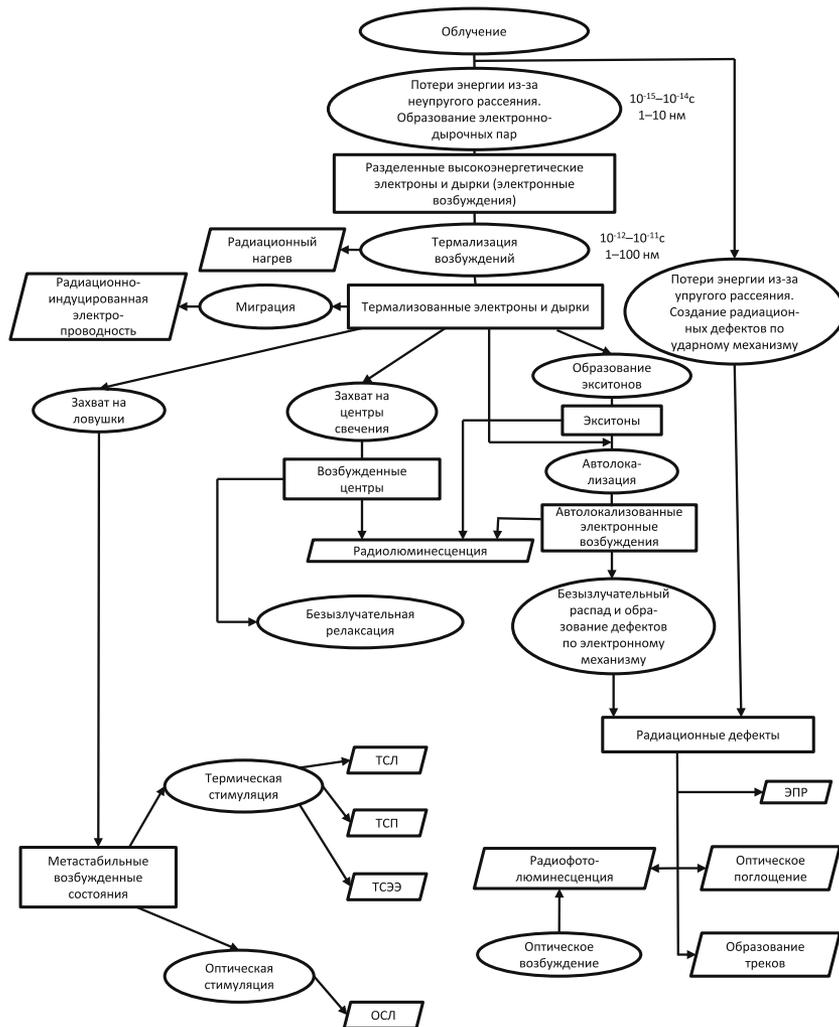


Рис. 1.5. Схема вторичных процессов преобразования энергии ионизирующего излучения в диэлектрике и вызываемых ими конечных физических эффектов. Прямоугольниками показаны метастабильные состояния электронных возбуждений, овалы показывают процессы изменения их состояний, параллелограммы обозначают конечные радиационные эффекты

стантных линий, свидетельствующих от том, что электроны теряют свою энергию отдельными порциями (квантами) с энергией порядка 10–30 эВ. Далее плазмоны обычно распадаются с образованием электронно-дырочных пар. Существует также поляронная модель [18, 19], в которой предполагается, что в результате взаимодействия с решеткой кристалла зонный электрон преобразуется в полярон, представляющий собой электрон, окруженный полем локальной поляризации решетки. Движение полярона рассматривается как движение электрона с некоторой эффективной массой, отличной от массы свободного электрона.

Генерация электронных возбуждений в диэлектрике продолжается до тех пор, пока электроны и дырки имеют достаточную для осуществления этого процесса энергию. При уменьшении энергии образование электронно-дырочных пар становится невозможным. В этом случае наблюдается только неупругое рассеяние свободных носителей заряда с передачей избыточной энергии оптическим фононам, что приводит к радиационному нагреву вещества. В результате электрон-фононного взаимодействия энергия электронов и дырок становится сравнимой с тепловой, поэтому процесс потери энергии посредством данного механизма называется термализацией и происходит за время порядка 10^{-12} – 10^{-11} с. В результате термализации электроны занимают состояния вблизи дна зоны проводимости, а дырки – вблизи потолка валентной зоны. В процессе термализации электроны и дырки могут изменить свое местоположение, что приводит к их миграции на довольно большие расстояния (1–100 нм). При взаимодействии термализованных электронов и дырок в диэлектриках образуются свободные экситоны, представляющие собой электронные возбуждения в виде связанной силами кулоновского притяжения электронно-дырочной пары. Для образования экситона необходима энергия, несколько меньшая ширины запрещенной зоны материала.

Состояние диэлектрика со свободными электронами и дырками является неравновесным. Дальнейшая релаксация термализованных электронных возбуждений может происходить по нескольким каналам: захват электронов и дырок на локальные уровни примесных или собственных дефектов кристаллической структуры; захват экситонов дефектами с образованием связанных экситонов; автолокализация электронных возбуждений, которая

происходит без участия дефектов в результате их взаимодействия с акустическими фононами решетки. Примером материалов, в которых эффективно осуществляются процессы автолокализации экситонов и дырок, являются щелочно-галогидные кристаллы (ШГК) [19,20]. Автолокализация электронных возбуждений может играть существенную роль при формировании радиационных дефектов, в частности, генерации френкелевских пар в диэлектрических материалах [20]. В полупроводниках эффекты автолокализации электронных возбуждений не были обнаружены.

Образовавшиеся в материале стабильные низкоэнергетические электронные возбуждения (электронно-дырочные пары и экситоны) определяют конечные эффекты, вызываемые воздействием радиации в твердом теле. Так, миграция образовавшихся в результате облучения электронов и дырок приводит к появлению в облучаемом материале радиационно-индуцированной проводимости. При захвате свободного электрона (дырки) собственным или примесным дефектом кристаллической решетки он переходит в возбужденное состояние, релаксация которого может происходить несколькими путями. При безызлучательной релаксации энергия возбужденного состояния передается фононной подсистеме вещества. В этом случае дефект является центром безызлучательной рекомбинации. При излучательной релаксации возбужденных состояний дефекты являются центрами свечения, длина волны которого определяется энергетической структурой центра. К свечению могут приводить возбужденные состояния не только центров, но и свободных и автолокализованных экситонов. Эффект, наблюдаемый при излучательной релаксации дефектных центров и экситонов во время облучения материала, называется радиoluminesценцией (РЛ).

Разновидностью рассмотренного электронно-дырочного механизма передачи энергии к центрам свечения является резонансный механизм, при котором электрон и дырка непосредственно рекомбинируют на дефекте, который сам не является центром свечения, а передает энергию к другому пространственно удаленному дефекту (центру люминесценции). Необходимым условием реализации данного механизма является совпадение разности энергий возбужденного и основного состояний двух типов дефектов, между которыми осуществляется резонансная передача энергии. Характерной чертой электронно-дырочного механизма передачи энергии к центрам свечения является его «замораживание»

при температурах ниже 100 К вследствие явления автолокализации дырок [21]. При таких температурах может доминировать другой механизм передачи поглощенной в веществе энергии за счет миграции экситонов с последующим их захватом центрами свечения [21].

Образование возбужденных состояний дефектных центров или автолокализованных экситонов может быть связано со значительной деформацией кристаллической решетки. В этом случае при распаде электронных возбуждений происходит образование френкелевского дефекта (пары «вакансия – междоузельный атом»). Электронный механизм генерации радиационных дефектов в результате безызлучательного распада автолокализованных экситонов и рекомбинации электронов с V_k -центрами, образующимися при автолокализации дырок, был впервые установлен для ЩГК [20] и определяет их радиационную стойкость. Наряду с электронным в диэлектриках может иметь место ударный механизм образования радиационных дефектов, при котором они возникают в результате упругих соударений падающих на кристалл частиц ионизирующей радиации с ядрами атомов или ионов кристаллической решетки материала (рис. 1.6). Данный механизм доминирует, в частности, в оксидных диэлектриках и определяет их высокую радиационную стойкость по сравнению с ЩГК, поскольку эффективность генерации дефектов при ударном механизме примерно на три порядка ниже, чем при электронном [22]. При ударном механизме радиационные дефекты возникают только при воздействии заряженных частиц и нейтронов с энергией, большей некоторого критического значения ($E_{кр}$), определяемого пороговой энергией смещения атомов в материале (E_d). Пороговые энергии смещения атомов имеют величину 5–80 эВ для различных твердых тел и атомов [22]. Кроме величины E_d , критическая энергия дефектообразования $E_{кр}$ определяется массой падающих частиц и может зависеть от кристаллографического направления и температуры вещества. При $E > E_{кр}$ эффективность образования дефектов путем смещения атома из узла решетки является функцией отношения масс падающей частицы (m) и выталкиваемого атома (M) (при $m < M$) [11]. Процесс ударного смещения атома решетки на расстояние, равное межатомному (10^{-10} м), занимает очень короткое время (10^{-14} с). Пороговые энергии смещения атомов и критические энергии дефектообразования для электронов в неко-

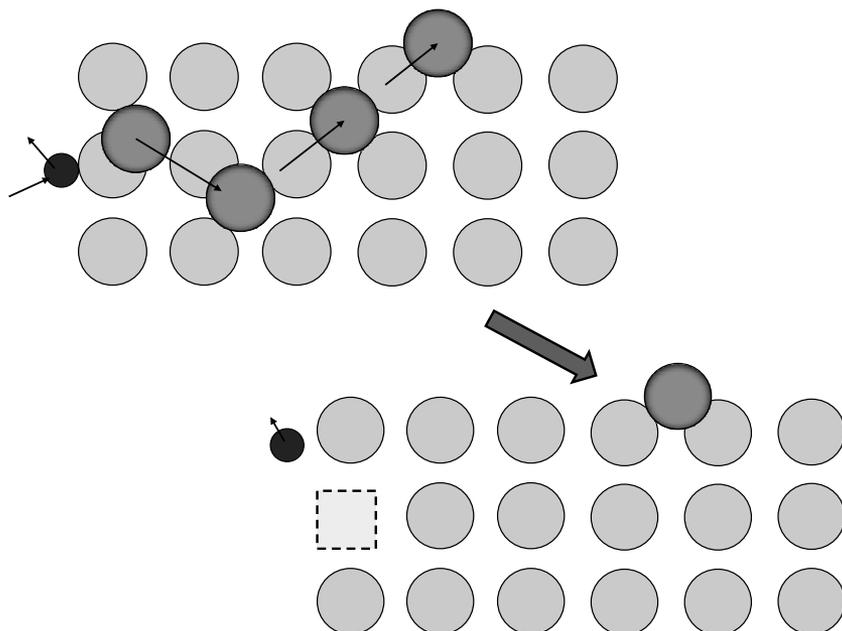


Рис. 1.6. Схема смещения атома при ударном воздействии налетающей частицы [11]

торых материалах приведены в табл. 1.2. Если энергия заряженной частицы меньше критической, то, как и в случае облучения материала рентгеновским и гамма-излучением, может наблюдаться изменение зарядового состояния уже существующих дорadiационных дефектов за счет распада электронных возбуждений (захвата электронов и дырок).

Образовавшиеся в результате распада электронных возбуждений или ударного механизма новые дефекты в диэлектрике могут являться электронными или дырочными центрами окраски, что приводит к изменениям в спектрах оптического поглощения (ОП) облученного материала. Если созданный дефект является парамагнитным центром (имеет неспаренный электрон), то он вызывает появление сигнала электронного парамагнитного резонанса (ЭПР). Кроме того, вновь образованные дефекты могут выступать в качестве центров фотолюминесценции (ФЛ). При последующем

Таблица 1.2. Пороговые энергии смещения атомов и критические энергии дефектообразования для электронов в некоторых кристаллических материалах [11]

Материал	Смещаемый атом	Пороговая энергия смещения (E_d), эВ	Критическая энергия электрона ($E_{кр}$), кэВ
Ge	Ge	12–20	320–530
Si	Si	11–22	115–330
Алмаз	C	80	530
InSb	In	6.0	250
	Sb	8.0	360
GaAs	Ga	9.0	230
	As	9.4	260
ZnS	Zn	10.0	240
	S	15–20	200
CdTe	Cd	5.6	235
	Te	7.8	340
MgO	O	60	320
BeO	O	76	400
Al ₂ O ₃	O	76	400

возбуждении данных центров в области максимума их оптического поглощения они излучают кванты света. Рассматриваемое явление называется радиофотолуминесценцией (РФЛ). Кроме того, при большой плотности возбуждения в облучаемом веществе могут формироваться треки, представляющие собой области с высокой локальной концентрацией радиационно-индуцированных дефектов. Следует также отметить, что изменения ОП, сигналов ЭПР, образование центров ФЛ могут наблюдаться не только в результате появления новых, но и при изменении зарядового состояния уже существующих дефектов.

Собственные и примесные дефекты кристаллической структуры диэлектрика могут также служить центрами захвата (ловушками) для термализованных электронов и дырок. При достаточно большой энергетической глубине ловушек запасаемая информация о радиационном воздействии может храниться достаточно длительное время. При термическом освобождении носителей заряда из ловушек может наблюдаться излучательная рекомбинация электронов с дырками на центрах свечения (эффект термостимулированной люминесценции (ТСЛ)). Опустошение ловушек

приводит также к росту концентрации свободных носителей заряда в делокализованных зонах, что вызывает появление термостимулированной проводимости (ТСП). Выход электронов, освободившихся из ловушек, с поверхности кристалла за его пределы обуславливает эффект термостимулированной экзоэлектронной эмиссии (ТСЭЭ). Явления люминесценции, экзоэлектронной эмиссии, рост электрической проводимости могут наблюдаться и при оптическом освобождении носителей заряда из ловушек. Среди оптически стимулированных явлений наибольшее применение в дозиметрии нашел эффект оптически стимулированной люминесценции (ОСЛ).

Проведенный выше анализ показывает, что в результате цепочки взаимосвязанных последовательных первичных и вторичных процессов, происходящих при взаимодействии излучения с веществом, в облученных конденсированных средах может наблюдаться целый ряд конечных радиационных эффектов, которые могут использоваться в твердотельной дозиметрии ионизирующих излучений. При этом основой всех методов радиационной дозиметрии является прямое или косвенное измерение поглощенной в детекторе энергии излучения. В зависимости от решаемых задач все твердотельные детекторы можно разделить на два класса: работающие в реальном времени и запоминающие (интегрирующие). Первые используются в тех случаях, когда необходимо измерять поле ионизирующего излучения непосредственно в момент его воздействия. Принцип действия детекторов этого типа основан на дозовых эффектах, проявляющихся при облучении материала: вспышках РЛ (сцинтилляционный детектор), индуцированной проводимости (полупроводниковый детектор), выделении тепла (калориметр). В запоминающих детекторах «память» о радиационном воздействии сохраняется длительное время после прекращения действия излучения. В них используются эффекты, связанные с запасанием дозиметрической информации на дефектах кристаллической структуры (ЭПР, свечение РФЛ, образование треков, явления ТСЛ, ТСП, ТСЭЭ, ОСЛ). Далее будут более детально рассмотрены особенности применения вышеперечисленных эффектов в различных типах детекторов ионизирующих излучений.