

УДК 539.1.074

## Термолюминесцентный дозиметрический детектор на основе синтетического алмаза

*В. Н. Амосов, С. А. Мещанинов, Г. Е. Немцев, Н. Б. Родионов, С. В. Терентьев*

*Представлено исследование возможности создания термолюминесцентного дозиметра на основе синтетического алмазного материала. На основе анализа экспериментального материала изготовлен образец синтетического алмаза с заданными свойствами, на базе которого создан дозиметрический термолюминесцентный детектор. Проведено исследование дозиметрических свойств. При дозах облучения свыше 1 Гр отклик детектора нелинеен и насыщается при дозе более 20 Гр.*

PACS: 78.60.Kn, 81.15.Gh, 87.66.Sq

*Ключевые слова:* алмаз, термолюминесценция, дозиметр, детектор.

### Введение

Необходимость точного измерения доз ионизирующего излучения является актуальной проблемой для ядерной энергетики. Одним из наиболее распространенных, надежных и простых методов дозиметрического контроля является твердотельная термолюминесцентная дозиметрия, а наиболее практичными приборами накопительного типа для дозиметрического контроля персонала и аварийной дозиметрии — термолюминесцентные (ТЛ) дозиметры, обладающие простотой в эксплуатации, высокой надежностью и сравнительной дешевизной. В индивидуальной дозиметрии в настоящее время применяется несколько типов термолюминесцентных детекторов (ТЛД), но для решения отдельных дозиметрических задач необходим подбор детекторов с оптимальными свойствами.

Под действием ионизирующего излучения в материале детектора рождаются электроны и дырки, которые могут захватываться на примесные уровни в запрещенной зоне. Захваченные носители заряда впоследствии могут быть высвобождены

под действием термического возбуждения и рекомбинировать на центрах люминесценции. Данный процесс носит название термолюминесценции. В самом простом случае скорость высвобождения центров захвата  $n$  и интенсивность свечения выражается уравнением:

$$\frac{dn}{dt} = -sn \exp(-E/kT),$$

где  $E$  — энергия активации центра, множитель  $s$  носит название частотного фактора и представляет собой вероятность процесса. При этом количество рожденных электронно-дырочных пар пропорционально дозе излучения.

Данный принцип лежит в основе широко распространенных дозиметров на основе фторида лития, бората магния или оксида алюминия (например, ДТГ-4). Исследования термолюминесценции алмаза и возможности его использования в качестве ТЛ-дозиметра ведутся с 40-х годов XX века [1, 2]. Здесь можно, например, выделить работу [3], в которой показано, что более яркую термолюминесценцию проявляют образцы с малым содержанием азота, что объясняется высоким временем жизни носителей заряда.

Привлекательность алмаза для целей дозиметрии обусловлена его свойствами, а именно, такими как тканезквивалентность, радиационная стойкость, химическая инертность. В то же время, ввиду высокой стоимости кристаллов алмаза применение термолюминесценции алмаза в ТЛ-дозиметрии долгое время не получало распространения. В последние годы был достигнут существенный прогресс в создании синтетических алмазов. Начиная с 2000 г., качество производимого алмазного материала стало сравнимым с качеством наиболее чистых природных кристаллов; при этом ряд лабораторий получил алмазный материал, превышающий по качеству природные алмазы. Кроме того, раз-

**Амосов Владимир Николаевич**, начальник группы.

**Мещанинов Сергей Анатольевич**, научный сотрудник.

**Немцев Георгий Евгеньевич**, научный сотрудник.

**Родионов Николай Борисович**, ведущий научный сотрудник. ФГУП "Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований".

Россия, 142190, Московская обл., г. Троицк, ул. Пушкиновых, владение 12.

Тел. 8 (495) 334-55-80. E-mail: nbrodnik@triniti.ru

**Терентьев Сергей Владимирович**, ведущий научный сотрудник.

ФГУ "Технологический институт сверхтвердых и новых углеродных материалов".

Россия, 142190, Московская обл., г. Троицк.

Статья поступила в редакцию 20 июня 2011 г.

© Амосов В. Н., Мещанинов С. А., Немцев Г. Е., Родионов Н. Б., Терентьев С. В., 2011

витие технологии получения искусственных алмазов позволило создавать кристаллы с заданым характером и количеством дефектов. В последнее время применение алмазов в ТЛ-дозиметрии вызывает постоянно растущий интерес [4—8].

Цель данной работы — исследовать возможность создания термолюминесцентного дозиметра на основе синтетического алмазного материала. В работе изучается влияние различных примесных центров, типичных для природных и синтетических алмазов, на интенсивность термолюминесценции. Для регистрации кривых термолюминесценции создана экспериментальная установка на базе малошумящего фотоэлектронного умножителя. Приведены кривые высвечивания для образцов алмазов разных типов.

В рамках данной работы создан алмазный термолюминесцентный дозиметр, который показывает высокую чувствительность, сравнимую с серийными термолюминесцентными дозиметрами. Высокая чувствительность алмазного детектора позволяет, в принципе, регистрировать фоновое гамма излучение с экспозицией менее суток. Наиболее подходящими для создания термолюминесцентных алмазных детекторов являются малоазотные образцы (тип Па) с некоторым количеством собственных дефектов решетки.

### Эксперимент

Для регистрации кривых термолюминесценции образцов алмазного материала была создана экспериментальная установка на базе малошумящего фотоэлектронного умножителя (ФЭУ). Основными элементами установки являются нагревательный элемент, фотоэлектронный умножитель 9807В ET Enterprises и электрометр Keithley 6517A.

В большинстве экспериментов облучение образцов производилось на рентгеновской установке "ИРИС-6". В прочих случаях набор дозы облучения производился с помощью источников гамма излучения "ОСГИ". Предварительно облученный алмазный образец помещается на поверхность нагревательного элемента. Система управления обеспечивает нагрев анализируемого образца с постоянной скоростью роста температуры. Управление мощностью нагревательного элемента производится с помощью программно-управляемого источника тока, реализованного на базе встроенного источника питания электрометра. Сигнал термолюминесценции образцов снимается посредством фотоэлектронного умножителя. Текущая температура нагревательного элемента измеряется стандартной хромель-копелевой термопарой.

Чтобы избежать попадания света от внешних источников, нагревательный элемент и ФЭУ помещены в плотно закрываемый, светонепроницае-

мый ящик. Ток ФЭУ и сигнал термопары измеряются электрометром Keithley 6517A и вольтметром В7-40А, соответственно. Управление установкой и считывание данных осуществляется по шине IEEE-488. По полученным значениям температуры печи и тока ФЭУ строятся кривые свечения. Нагрев образцов производится от 20 до 300 °С со скоростью 1 град/с. Выделение сигнала термолюминесценции на фоне свечения нагревателя на входном окне ФЭУ осуществляется с помощью светофильтра СЗС-8.

В данной работе проведено исследование ряда алмазов, различающихся содержанием и характером дефектов. Ниже приводимые номера образцов алмазов соответствуют рабочей нумерации в базе данных лаборатории. Исследовались следующие образцы: YY00, YY01, YY06 — природные алмазы с малым содержанием азота; образцы X05, X20 — природные с А-дефектом и наработанным НЗ-центром в результате облучения на ядерном реакторе и последующего глубокого отжига; ХХ48 — желтый искусственный образец с С-дефектом; WX20, WX22, WX25 — искусственные ярко люминесцирующие малоазотные образцы производства ФГУ "ТИСНУМ"; WX44 — наименее дефектный образец производства фирмы "Element Six" с очень низким содержанием дефектов на уровне нескольких ppb (частиц на миллиард). На рис. 1 и 2 приведены кривые свечения некоторых кристаллов, предварительно облученные при дозе облучения 25 Гр.

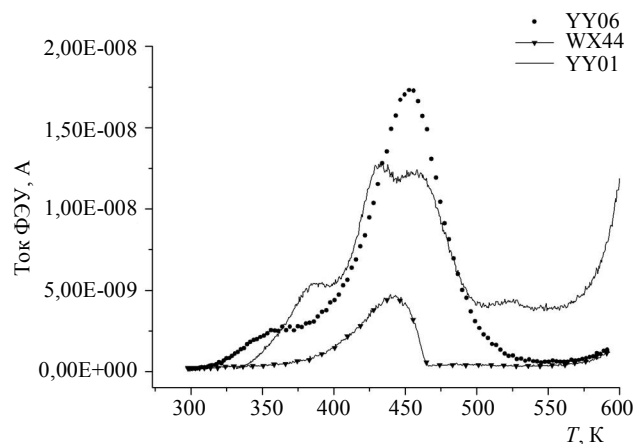


Рис. 1. Кривые свечения образцов YY06, WX44, YY01 при дозе облучения 25 Гр

Как видно из спектров термолюминесценции, большинство алмазов имеют температурный пик около 440 К, который наиболее подходит для дозиметрических целей. Наиболее яркое свечение показывают искусственные образцы WX20, WX22, WX25 и образцы природного алмаза X05, X20. Основной примесью для этих образцов является азот в форме А-центра. При этом образец ХХ48 с содержанием азота в форме С-центра на

уровне 10—20 ppm (частиц на миллион) практически не показывает термолюминесценции, что согласуется с данными о С-центре как центре гашения люминесценции. Поэтому синтетические алмазы с С-дефектом непригодны для целей ТЛ-дозиметрии. Из-за малого времени жизни носителей в таком материале более вероятен процесс безызлучательной рекомбинации. Следует отметить, что высокочистый образец WX44 также имеет ярко выраженный термолюминесцентный пик на 440 К. Данные авторов согласуются с данными, показанными в [3] о том, что образцы с малым средним содержанием примесей более пригодны для дозиметрического применения. Это обусловлено большими значениями времени жизни носителей заряда в указанных образцах. Тот факт, что слабопримесный образец показывает пик термолюминесценции, аналогичный пикам, полученным на образцах с существенным содержанием азота в форме А-дефекта, указывает, что азот не является центром люминесценции. Наиболее вероятными центрами люминесценции в алмазе являются структурные дефекты кристалла, например, дислокации.

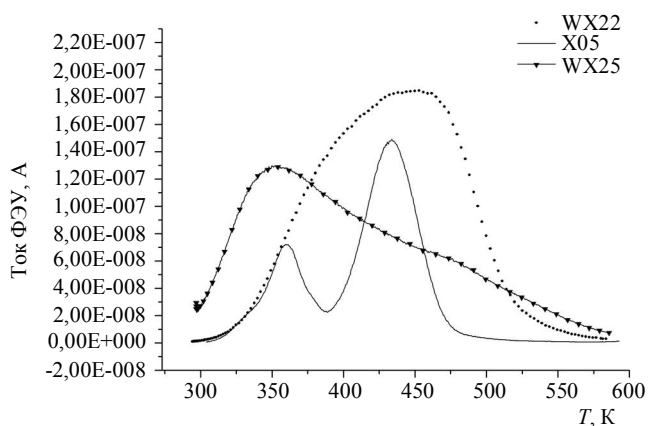


Рис. 2. Кривые свечения образцов WX22, X05, WX25 при дозе облучения 25 Гр

В рамках данной работы в ФГУ "ТИСНУМ" были созданы образцы WX22 и WX25. Это ярко люминесцирующие искусственные алмазы типа Па по физической классификации. Данные образцы отличаются от прочих алмазов, выращенных по технологии НТНР, тем, что они были подвергнуты высокотемпературному отжигу под давлением, при котором была произведена трансформация основной примеси азота в форме С-дефекта в форму А-центра. Данные образцы характеризуются также повышенным содержанием НЗ-дефекта. Образцы облучались на рентгеновской установке "ИРИС-6" с дозами облучения от 0,01 до 40 Гр. Сигнал, соответствующий дозе облучения, рассчитывался по интегралу кривой свечения. При этом проводился предварительный неполный отжиг, стирающий заряды, захваченные на мелкие центры.

В спектре термолюминесценции образца WX22 наблюдаются три пика с максимумами на 385, 430 и 475 К (рис. 3). Выделение пиков производится методом частичной очистки спектра при предварительном отжиге до фиксированной температуры. Приблизительные оценки показывают, что данные пики лежат в диапазоне энергий активации 0,5—0,6 эВ и не связаны с энергетическими уровнями А- и С-азотных центров (1,7 эВ) [4].

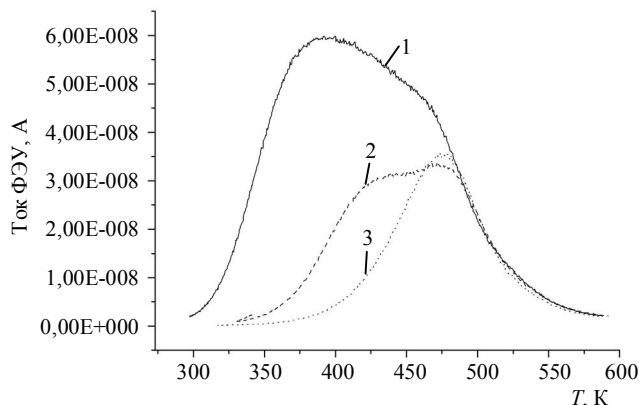


Рис. 3. Выделение пиков в кривых свечения образца WX22. 1 — кривая свечения получена без предварительного отжига; 2 — предварительный отжиг до температуры 340 К; 3 — кривая, полученная после предварительного отжига до 370 К

В интервале доз облучения менее 50 мГр сигнал детектора линеен, при более высоких дозах отклик детектора становится нелинейным и насыщается при дозе порядка 5 Гр.

Образец WX25 был обработан с учетом результатов образца WX22. Область линейности отклика образца WX25 шире, чем у WX22, до 1 Гр, насыщение сигнала наблюдается при дозах порядка 20 Гр (рис. 4). Образец WX25 также хорошо работает в области малых доз облучения. Эксперимент, поставленный с облучением образца от источника "ОСГИ" Na<sup>22</sup> с дозой 50 мкГр, показал, что при помощи данного детектора можно измерять дозы вплоть до фоновых. Это видно из отношения уровня получаемого сигнала к шумам измерительной системы (рис. 5).

Наиболее широкий диапазон линейности отклика детектора и наибольшие значения предельно измеряемой дозы до 100 Гр были получены на образце X20. Данный образец характеризуется максимальным содержанием НЗ-дефекта, полученного при радиационном повреждении данного кристалла алмаза и последующем отжиге. Основной примесью исходного материала данного образца является азот в форме А-дефекта с плотностью порядка 10 ppm. По данным большинства авторов, А-центр является донором. Вероятно, что НЗ-центр, представляющий собой комплекс "А-центр плюс вакансия", является акцептором и выполняет функцию компенсирующей примеси.

Насыщение сигнала термолюминесценции в общем случае ограничивается не только конечной плотностью основного центра захвата носителей заряда, но также и плотностью компенсирующей примеси. Компенсирующая примесь позволяет накопить большее значение заряда на основном центре захвата без нарушения принципа квазинейтральности.

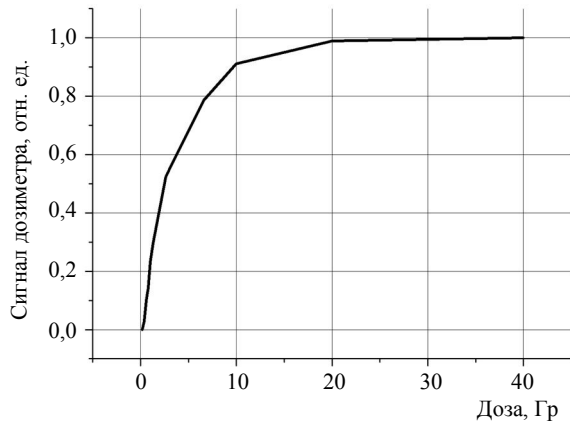


Рис. 4. Отклик детектора в области больших доз, образец WX25

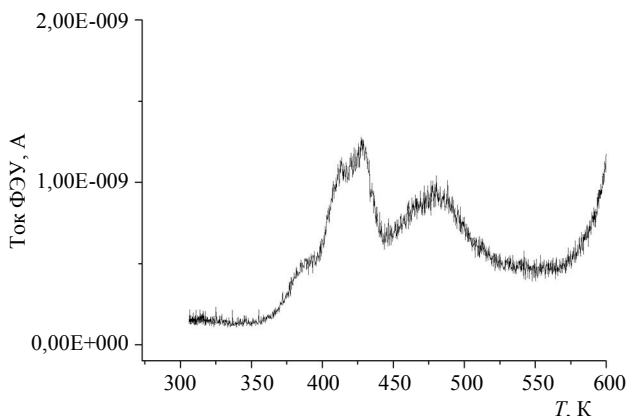


Рис. 5. Кривая свечения образца WX25 при дозе облучения 50 мкГр

## Заключение

Анализ кривых свечения образцов с различным содержанием и типом дефектов показал, что наиболее яркую картину термолюминесценции имеют алмазы с низким содержанием азота и некоторым количеством собственных дефектов решетки. На основе анализа экспериментального материала изготовлен образец синтетического алмазного материала с заданными свойствами, на базе которого создан алмазный дозиметрический термолюминесцентный детектор с высокой чувствительностью, сравнимой с серийными ТЛ-дозиметрами. Проведено исследование дозиметрических свойств данного образца. Выполнена оценка энергий активации различных центров термолюминесценции. Отклик детектора линеен в диапазоне доз облучения до 1 Гр. При дозах облучения свыше 1 Гр отклик детектора нелинеен и насыщается при дозе более 20 Гр. Высокая чувствительность созданного алмазного дозиметра позволяет измерять малые дозы излучения вплоть до фоновых с экспозицией порядка суток.

## Литература

1. Raman C. V. The nature and origin of the luminescence of diamond // Proceedings of the Indian Academy of Sciences, Section A. 1944. V. 19.
2. Chandrasekharan V. The thermoluminescence of diamond // Proceedings of the Indian Academy of Sciences, section A. 1946. V. 24.
3. Nam T. L., Keddy R. J., Burns R. C. Diamond as a thermoluminescence material, US Patent #4754140, 1988.
4. Квасков В. Б. Природные алмазы России. — М.: Полярон, 1997.
5. Chen R., Kirsch Y. Analysis of Thermally Stimulated Processes, Pergamon Press, London, 1981.
6. Barboza-Flores M., Melendrez R., Gonsalves J. A. N. // Phys. Stat. Sol. (a). 2004. V. 201, No. 11. P. 2548.
7. Rebisz M., Guerrero M. J. et al. // Diamond and Related Materials. 2004. V. 13. P. 796.
8. Chen R., McKeever S. W. S., Durrani S. A. (1981b) // Phys. Rev. 1981. V. B24. P. 4931.

## Thermoluminescent dosimetric detector on basis of a synthetic diamond

V. N. Amosov, S. V. Meshchaninov, G. E. Nemtsev, N. B. Rodionov  
TRINITY

12 Pushkov's str., Troitsk, Moscow region, 142190, Russia  
E-mail: nbrodnik@trinit.ru

S. V. Terent'ev  
TISNUM

Troitsk, Moscow region, 142190, Russia

*This report devotes to research of the thermoluminescent dosimeter on basis of a synthetic diamond. Investigated is the dosimetric features. The detector becomes saturated at the 20-Gy dose.*

PACS: 78.60.Kn, 81.15.Gh, 87.66.Sq

Keywords: diamond, thermoluminescence, dosimeter, detector.

Bibliography — 8 references.

Received June 20, 2011