

916065

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

14-96-159

На правах рукописи

АЛЬ САИД МОХАМЕД
АБУ ЭЛЬ АЗМ

Д-177
ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ α - Al_2O_3 ,
СТИМУЛИРОВАННАЯ ТЯЖЁЛЫМИ ИОНАМИ
С ЭНЕРГИЕЙ > 1 МэВ/а.е.м.

Специальность: 01.04.07 — физика твёрдого тела

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Дубна 1996

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г.Н.Флерова
Объединенного института ядерных исследований, Дубна

Научные руководители:

кандидат физико-математических наук,
старший научный сотрудник

А.Ю. Дидык

кандидат физико-математических наук

В.А. Скуратов

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук, профессор

В.П. Перельгин

кандидат физико-математических наук,
старший научный сотрудник

В.С. Вариченко

Ведущая организация:

Государственный научный центр РФ - Физико-Энергетический институт,
г. Обнинск

Защита диссертации состоится "14" июня 1996 года в "10" час
на заседании диссертационного Совета Д.017.01.05 при Лаборатории нейтронной
физики и Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ (141980 г. Дубна Московской области,
ОИЯИ, ЛЯР).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.

Автореферат разослан "14" мая 1996 года

Ученый секретарь диссертационного Совета,
кандидат физико-математических наук

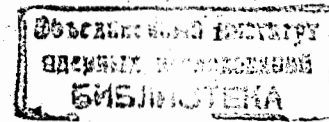
ПОПЕКО А.Г.

Общая характеристика работы

Актуальность темы

Процессы диссипации энергии тяжелых заряженных частиц в диэлектрических материалах сопровождаются генерацией электромагнитного излучения в ультрафиолетовой и видимой областях оптического спектра, вызванного распадом экситонов, люминесценцией центров окраски, центров, связанных с примесными атомами, а также других структурных дефектов и комплексов. Поэтому "in-situ" исследования спектров люминесценции, возбуждаемых тяжелыми ионами в зависимости от дозы повреждений, температуры облучения и других факторов, представляют интерес с точки зрения получения информации об эволюции дефектной структуры облучаемых материалов. В таких экспериментах использовались, как правило, пучки ионов с энергиями в десятки и сотни кэВ, в результате чего исследуемый слой образца ограничивается проективным пробегом низкоэнергетических ионов, т.е. толщинами, значительно меньшими 1 мкм. Кроме того, для исключения процессов распыления материала, играющих существенную роль в этом диапазоне энергий, необходимо использовать для возбуждения люминесценции легкие ионы - водород, дейтерий, гелий. Увеличение энергии ионов до 1 МэВ/а.е.м. и более высоких позволяет снизить распыление, исключить влияние поверхности как стока радиационных дефектов и, за счет увеличения ионизационных потерь энергии, повысить выход люминесценции. Известно, что потери энергии тяжелых ионов на возбуждение электронной подсистемы имеют максимальное значение при энергии бомбардирующей частицы $\approx 1 \text{ МэВ/а.е.м.}$. Эти особенности позволяют выделить высокоэнергетическую ионoluminesценцию как один из немногих неразрушающих методов для получения "структурной" информации при исследовании свойств твердых тел на пучках тяжелых ионов.

Одними из наиболее радиационно-стойких диэлектриков можно выделить кристаллы окиси алюминия (Al_2O_3). Беспримесные поли- и монокристаллы Al_2O_3 ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ или лейко-сапфир) в настоящее время привлекают внимание исследователей как наиболее перспективные для использования в различных конструкциях экспериментального термоядерного реактора ITER в качестве изолирующих материалов. Как известно, радиационные дефекты в лейко-сапфире образуются только под действием излучений, вызывающих атомные смещения, что исключает



ионизацию как возможный источник первичных структурных нарушений. В то же время, образование электронов и дырок одновременно с атомными смещениями значительно влияет на эволюцию дефектной структуры облучаемого кристалла. Одним из многочисленных примером подобного влияния является радиационно-индуцированная проводимость, величина которой зависит от соотношения ионизирующей и повреждающей компонент излучения. Поэтому исследования радиационной повреждаемости Al_2O_3 в условиях облучения тяжелыми заряженными частицами, когда сочетаются высокие уровни скорости дефектообразования и ионизационных потерь энергии, представляется весьма актуальным. Следует заметить, что на момент начала экспериментальных исследований, результаты которых представлены в настоящей работе, эксперименты "in-situ" по изучению оптических свойств сапфира на пучках тяжелых ионов высоких энергий не проводились.

Целью настоящей работы являлось экспериментальное исследование спектрального состава люминесценции монокристаллов Al_2O_3 при возбуждении тяжелыми ионами с энергией ≈ 1 МэВ/а.е.м. в диапазоне длин волн 225-550 нм и интервале температур облучения 80-350К.

Научная новизна. В ходе выполнения диссертационной работы были впервые рассмотрены и решены следующие задачи:

Впервые измерены спектры люминесценции монокристаллов Al_2O_3 в процессе облучения высокоэнергетичными ионами В, Ne, Ar (энергия ионов порядка 1 МэВ/а.е.м.) и Kr (энергия - 2.5 МэВ/а.е.м.).

Впервые изучена зависимость спектрального распределения люминесценции сапфира от дозы радиационных повреждений, плотности ядерных и ионизационных потерь энергии ионов, температуры облучения.

Практическая значимость работы. Полученные в работе результаты могут быть использованы при решении задач физики радиационных повреждений, связанных с моделированием эффектов в диэлектрических материалах, являющихся элементами конструкций ядерно-энергетических установок а также при разработке технологий высокоэнергетической ионной имплантации.

Основные положения выносимые на защиту:

1. Результаты исследований спектрального состава люминесценции монокристаллов Al_2O_3 , генерируемого высокоэнергетичными ионами В, Ne, Ar и Kr.

2. Установленные закономерности изменения интенсивности ионно-люминесценции сапфира с дозой радиационных повреждений, плотностью ядерных и ионизационных потерь энергии ионов, температурой облучения.

Апробация работы. Основные результаты диссертации докладывались на IV Межнациональном совещании "Радиационная Физика Твердого Тела", Севастополь, 27 июня-2 июля, 1994, X международной конференции "Ion Implantation Technology", Catania, Italy, June 13-17, 1994, международной конференции "Beam Technologies (BT'95)", Dubna, Russia, February 28-March 4, 1995, международной конференции "SHIM-95 (Swift Heavy Ions in Matter)", Caen, France, May 15-19, 1995, международной конференции "II International School and Symposium on Physics in Materials Science", Jaszowiec, Poland, September 17-23, 1995, международной конференции "Seventh International Conference on Fusion Reactor Materials", Obninsk, Russia, September 24-29, 1995.

Публикации. Основные результаты диссертации опубликованы в 5 работах.

Структура диссертации. Диссертация состоит из введения, трех глав и заключения. Объем диссертации - 95 страниц машинописного текста, включая 17 рисунков, 5 таблиц и библиографический список из 104 наименований.

Содержание работы

Во введении обоснована актуальность и сформулирована цель диссертационной работы. Указана практическая важность и научная новизна полученных результатов. Приведены основные положения, выносимые на защиту.

Первая глава посвящена обзору известных из литературы экспериментальных результатов по изучению спектров фото (ФЛ)-, катода (КЛ)-, рентгенолюминесценции (РЛ) предварительно облученных монокристаллов $\alpha-Al_2O_3$, а также спектров, регистрируемых в процессе облучения низкоэнергетичными ионами и нейтронами. Согласно приведен-

ным данным, спектральное распределение в рассматриваемом в диссертации диапазоне длин волн может включать в зависимости от исходного состояния кристалла и способа возбуждения широкие полосы с максимумами при 3,0, 3,8 и 4,3 эВ. Полоса 3,0 эВ присутствует в спектрах люминесценции при облучении всеми видами ионизирующей радиации и возбуждении светом и приписывается F -центрам (двум электронам в поле анионной вакансии). Полоса при 3,8 эВ также наблюдается под действием всех видов радиации, однако, в отличие от полосы 3,0 эВ она является сложной и может включать до трех элементарных полос, связанных с излучательными переходами в F^+ -центрах (один электрон в поле анионной вакансии), междоузельными атомами алюминия и рекомбинацией автолокализованных экситонов. Природа полосы 4,3 эВ также однозначно не определена. Одним из наиболее вероятных процессов, ответственных за излучение с данной энергией, считается диффузионно-контролируемая туннельная рекомбинация автолокализованных дырок (АЛД). Отмечается, что в настоящее время нет прямых экспериментальных подтверждений существования автолокализованных электронных возбуждений в сапфире, как нет и единой точки зрения на эту проблему.

Часть обзора посвящена анализу данных, полученных с использованием излучений, характеризующихся различным соотношением потерь энергии на ионизацию и упругое рассеяние. Показано, что соотношение интенсивностей полос F и F^+ -центров в спектрах поглощения и люминесценции является параметром, чувствительным к плотности ионизационных и ядерных потерь энергии бомбардирующих частиц и, поэтому, удобным для сопоставления воздействия различных излучений. Отмечается, что эти данные получены, в основном, для низкоэнергетических ионов. Систематические исследования микроструктуры и оптических свойств сапфира в условиях облучения высокоэнергетическими тяжелыми ионами ранее не проводились.

В заключении к первой главе формулируется постановка задачи диссертационной работы.

Во второй главе приведено описание установки для регистрации спектров ионolumинесценции (ИЛ) твердых тел на ускорителях циклотронного комплекса ФЛЯР ОИЯИ, методики проведения экспериментов и обработки измеренных спектров, а также краткая характеристика объектов исследования.

Отмечается, что условия облучения на циклотронах ИЦ-100 и У-400 обеспечивают специальные требования, предъявляемые к экспериментам на ускорителях заряженных частиц, в частности, однородность распределения пучка ионов по площади образца. На У-400 однородное распределение достигалось путем использования электростатических систем сканирования пучка (частота сканирования 2–8 кГц, амплитуда синусоидального напряжения до 30 кВ) в вертикальном и горизонтальном направлениях. Вывод ионов электростатическим методом на циклотроне ИЦ-100 позволяет получать однородно распределенный пучок на площади более 30 см², что и использовалось при облучении образцов.

Измерение спектров ИЛ проводилось на установке, разработанной в Центре прикладной физики ФЛЯР ОИЯИ, основными элементами которой являются- вакуумная камера с держателем образцов, монохроматор с блоком дистанционного управления, система сбора, накопления и обработки информации на базе аппаратуры в стандарте КАМАК и персонального компьютера. Процедура предварительной обработки включает коррекцию спектров с учетом спектральной чувствительности ФЭУ, а также определение положения максимумов, ширины на полувысоте и интенсивности полос в предположении, что они описываются гауссовским распределением.

Приводится обоснование выбора плотности потока ионов и формы образцов с учетом необходимости получения информации о дозовой зависимости спектров ИЛ за реальное время эксперимента и требованием исключения перегрева облучаемого слоя образца. Представлены также оценки изменения температуры мишени за время одного импульса пучка. Показано, что температурный режим во время облучения можно считать квазистационарным.

В третьей главе приведены результаты экспериментов по исследованию спектров ИЛ и их обсуждение. В первой части главы 3 обсуждается дозовая зависимость спектрального состава ионolumинесценции. Вторая часть посвящена анализу зависимости спектров от массы и энергии ионов, а также сопоставлению спектров ИЛ и КЛ, измеренных на образцах, предварительно облученных высокоэнергетическими ионами.

Генерация люминесценции тяжелыми ионами происходит вместе с образованием радиационных дефектов, что предполагает зависимость

спектров от их концентрации. Поэтому наиболее корректным представляется сопоставление спектров, возбуждаемых разными ионами при одном и том же уровне повреждений D в смещениях на атом (dpa). Расчет этого значения, а также проективных пробегов ионов R_p , удельных потерь энергии на ионизацию $(dE/dx)_{ion}$ и упругое рассеяние $(dE/dx)_{el}$ проводился с помощью программы TRIM-90. На рис. 1 представлены спектры ИЛ измеренные при температуре 80 К в процессе облучения ионами В, Ne и Ar при $D = 1,5 \times 10^{-5}$ dpa. Как видно из рисунка, спектральный состав люминесценции при высокоэнергетическом ионном облучении также включает широкие полосы с максимумами при 3,0, 3,8 и 4,35 эВ, природа которых рассматривалась в первой главе.

Зависимость спектрального состава от дозы радиационных повреждений приведена на рис. 2 на примере спектров ИЛ, возбуждаемых ионами Ar и Ne при 80 и 300 К. Из приведенных данных делается вывод, что в условиях высокоэнергетического ионного облучения в исследуемом интервале флюенсов ионов наблюдаются по крайней мере две стадии дозовой зависимости интенсивности ИЛ. На первой стадии присутствуют все три отмеченные выше полосы. При этом интенсивность полос 3,0 и 3,8 эВ увеличивается и выходит на насыщение, в то время как интенсивность полосы 4,35 эВ падает до недетектируемого уровня пропорционально D^{-n} , где $n=5-6$ для ионов В, Ne и Ar. На второй стадии регистрируются только две полосы 3,0 и 3,8 эВ, интенсивность которых практически не изменяется с дозой повреждений.

Отмечается, что сильная зависимость полосы 4,3 эВ от концентрации радиационных дефектов подтверждает предположение о диффузионно-контролируемой туннельной рекомбинации АЛД. Этот механизм, как известно, включает стадию диффузионного сближения электрона и АЛД. Наличие этой стадии в любых процессах радиoluminesценции подразумевает так называемые миграционные потери из-за захвата носителей заряда структурными дефектами и, следовательно, определенную зависимость выхода люминесценции от концентрации дефектов, подобную наблюдаемой для полосы 4,3 эВ. К числу таких дефектов в нашем случае относятся, прежде всего анионные вакансии, являющиеся эффективными ловушками для электронов, в результате чего и образуются F -центры всех типов или изменяется их зарядовое состояние.

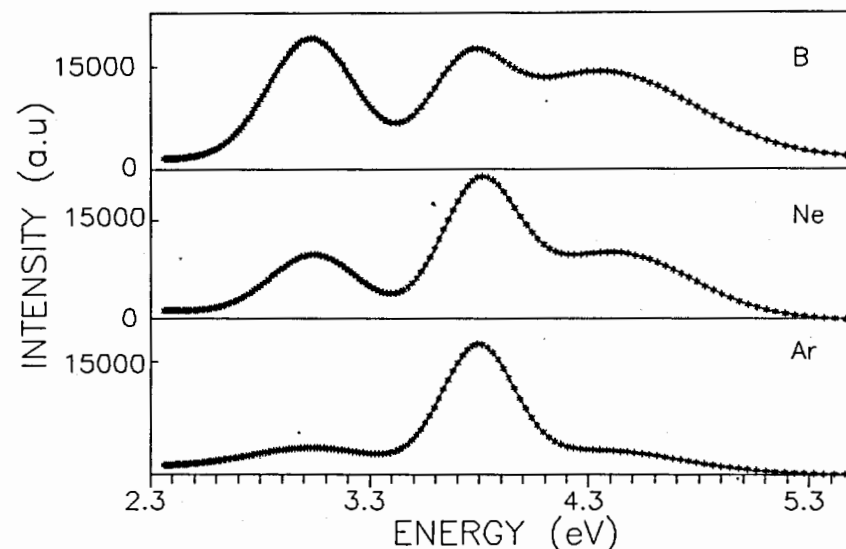


Рис. 1. Спектры люминесценции $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, генерируемые тяжелыми ионами с энергией 1 МэВ/а.е.м. при 80 К. $D \approx 1,5 \times 10^{-5}$ dpa.

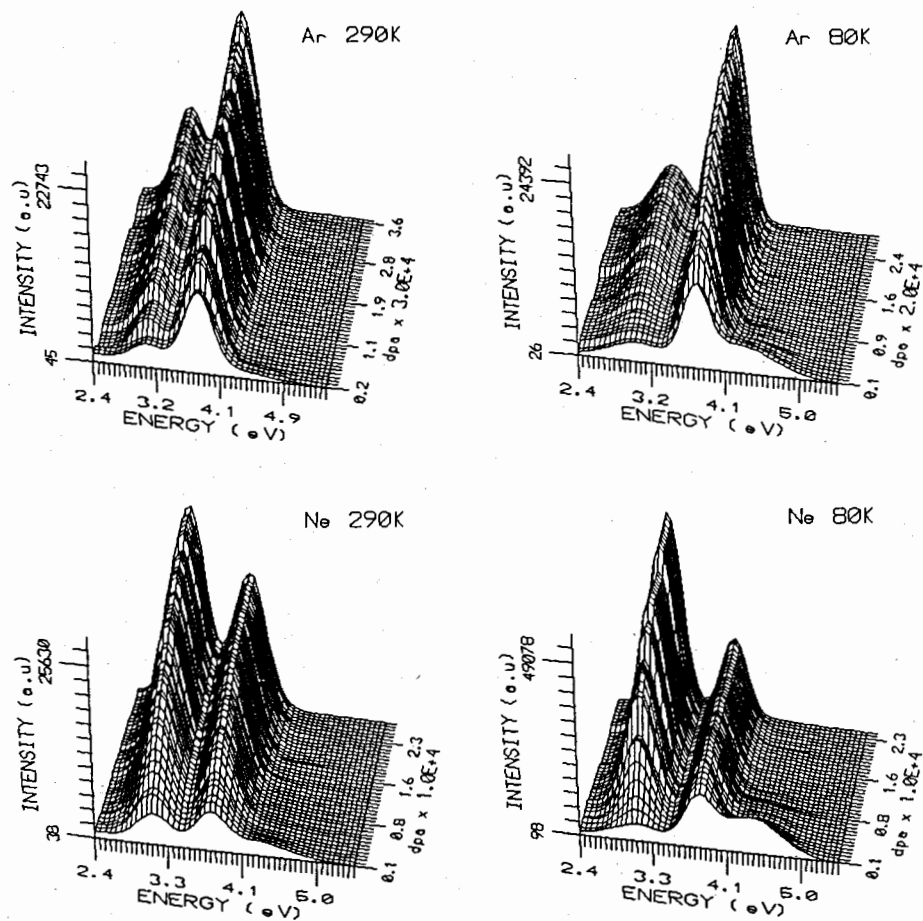


Рис. 2. Зависимость интенсивности ионолюминесценции от дозы повреждений для ионов Ne и Ar при 80 и 290 К.

Рассматривая возможный вклад излучения автолокализованных экситонов (АЛЭ) в полосу 3,8 эВ и, учитывая, что образование F -центров и АЛЭ является конкурирующими процессами, высказывается предположение, что по аналогии с АЛД он также будет ограничен дозой повреждения 10^{-4} дпа. Таким образом, при более высоких уровнях повреждения выход люминесценции, генерируемой высокоэнергетичными ионами, определяется внутрицентровыми переходами в F и F^+ -центрах.

На рис. 3 представлена зависимость отношения интенсивности в F и F^+ полосах на стадии насыщения в зависимости от величин S_e и S_n , определенных как полные потери энергии ионов на ионизацию и упругое рассеяние, нормированные на единицу длины пробега. Данные, приведенные на этом рисунке, усреднены для трех серий образцов. Четыре значения S_e и S_n соответствуют облучению ионами В, Ne, Ar и Kr. Как видно из рисунка, относительная интенсивность излучения F центров уменьшается с ростом удельных потерь энергии ионов на ионизацию и упругое рассеяние. Отмечается, что полностью разделить вклад в наблюдаемый эффект ионизационных и упругих потерь энергии не представляется возможным, однако можно сделать ряд выводов об их роли в формировании спектрального состава высокоэнергетической ИЛ.

Из данных по люминесценции облученных быстрыми нейтронами образцов сапфира следует, что после флюенса 10^{16} см^{-2} практически не наблюдается излучения F -центров, в то время как излучение F^+ -центров регистрируется и при значительно больших дозах облучения. Это связывается с концентрационным тушением, причиной которого является то, что F -центры, как и другие радиационные дефекты при облучении быстрыми нейтронами образуются, в основном, на каскадах атомных смещений. Наблюдаемая же люминесценция обусловлена F -центрами, находящимися вне сильно разупорядоченных каскадных областей, что справедливо и для ионного облучения. Известно, что с увеличением массы и энергии ионов возрастает и число дефектов, образованных высокоэнергетичными атомами отдачи, т.е. на каскадах смещений, по отношению к общему числу дефектов. В соответствии с этим должна уменьшаться интенсивность F -центров по отношению к F^+ -центрам, что коррелирует с приведенной на рис. 3 зависимостью.

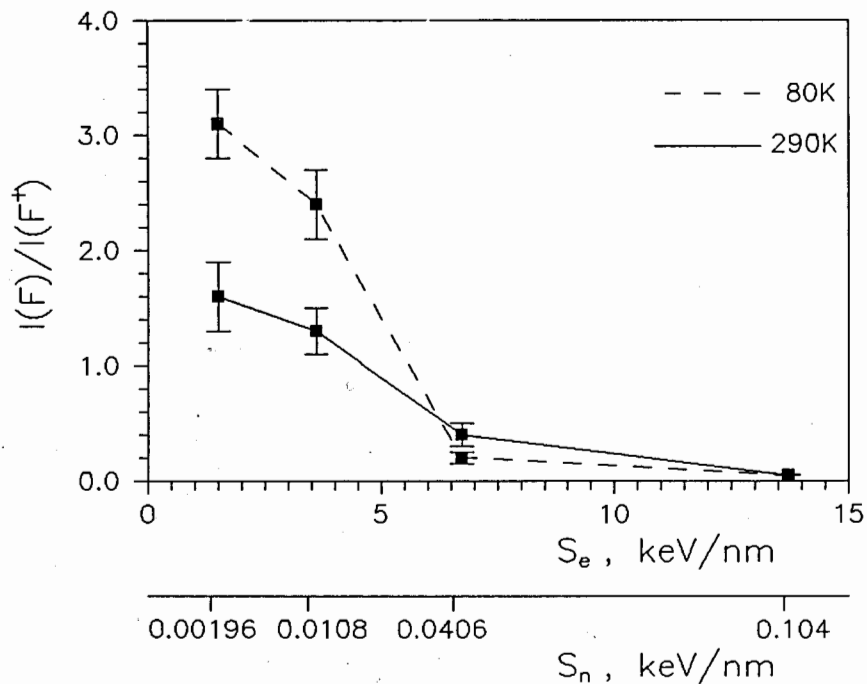


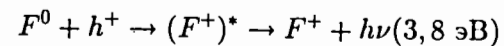
Рис. 3. Зависимость отношения интенсивности люминесценции F и F^+ -центров от плотности ионизационных и ядерных потерь энергии ионов.

Отмечается, что большие значения $I(F)/I(F^+)$ при 80, чем при 300 К, наиболее вероятно, связаны со снижением рекомбинации точечных дефектов при низкой температуре.

Анализируя возможное влияние ионизационных потерь энергии, отмечается, что спектры ИЛ не несут информацию о промежуточных этапах релаксации энергосвободения в треках ионов. Характерные времена этих процессов значительно меньше времени жизни возбужденных состояний F^+ (≈ 4 ns) и, особенно, F -центров (30 ns). Максимальный по длительности процесс выравнивания температуры в области трека в сапфире при 300 К не превышает по нашим оценкам 10^{-10} с. Делается вывод, что спектральное распределение отражает, прежде всего, предисторию формирования дефектной структуры мишени к моменту измерения - при какой плотности образования дефектов, плотности ионизации, температуре облучения происходило накопление радиационных повреждений. Зависимость спектров от предистории образца демонстрируется следующим примером. Отношение $I(F)/I(F^+)$, полученное для образца, облученного при 300 К, не изменяется при последующем уменьшении температуры до 80 К, т.е. регистрируемые при 80 К спектры определяются параметрами дефектной структуры, сформировавшейся при 300 К.

Кроме этого, сопоставление таких параметров, как длина термализации носителей заряда, определяющего размеры возбуждаемой области кристалла l_{th} и длины свободного пробега ионов $\langle l \rangle$ показывает, что для ионов В, Ne и Ag $l_{th} \gg \langle l \rangle$ практически для всего облучаемого облучаемого слоя мишени. Следовательно, в зону возбуждения люминесценции попадают, в основном, ранее образовавшиеся дефекты.

В качестве одного из наиболее значительных эффектов ионизации рассматривается изменение зарядовых состояний дефектов в области ионного трека. Предполагается, что из-за более высокой подвижности электронов по сравнению с дырками, центральная область трека будет содержать более высокую концентрацию дырок, чем периферия. Следствием подобной ситуации будет преимущественное образование F^+ -центров за счет реакции



промежуточным состоянием которой является возбужденное состояние F^+ -центра- $(F^+)^*$.

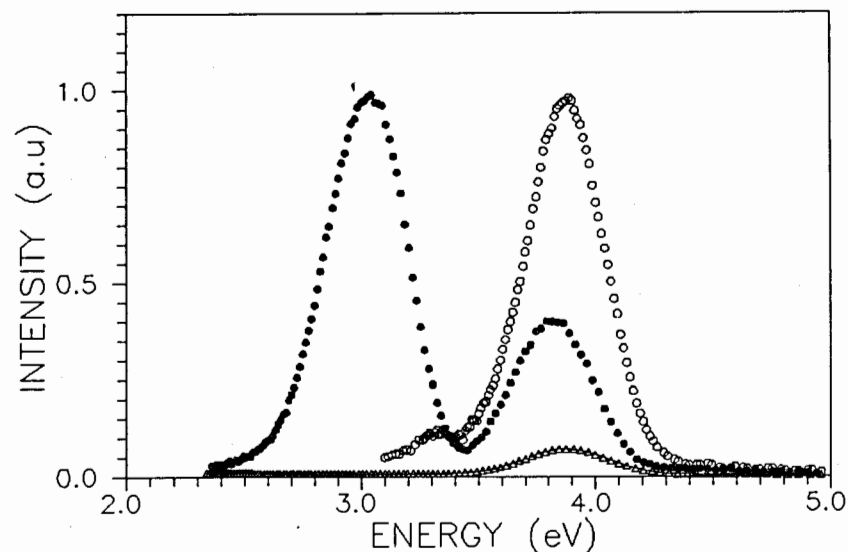


Рис. 4. Спектры катодолуминесценции (10 кэВ, 10 μ А, 80 К, \circ – образец облучен ионами Ne, $D \approx 10^{-4}$ дпа, \triangleright – необлученный образец) и ионолуминесценции α -Al₂O₃ (\bullet – облучение ионами Ne, 80 К)

Излучение в F полосе может быть подавлено также из-за искажения решетки, возникающими при ионном облучении напряжениями [1]. Уровень напряжений в ионных кристаллах зависит не только от концентрации радиационных дефектов, но и от их зарядового состояния, что предполагает зависимость от плотности ионизации. Делается вывод, что в отличие от низкоэнергетичного ионного облучения, при котором основным источником напряжений является захороненный слой дефектов, для высокоэнергетичных ионов необходимо учитывать также влияние локальных напряжений в области ионного трека.

Еще одним каналом снижения выхода люминесценции F -центров является рекомбинация точечных дефектов, находящихся вне сильно разупорядоченных областей, в результате ионизационно-индуцированной диффузии (ionization enhanced diffusion, IED). Необходимость учета IED была показана на примере электронномикроскопических исследований Al₂O₃, облученных низкоэнергетичными ионами с разным соотношением ионизационных и ядерных потерь энергии [2].

В заключительной части третьей главы обсуждаются особенности спектров КЛ, измеренных на образцах α -Al₂O₃, использовавшихся в экспериментах на пучках тяжелых ионов и облученных до дозы $\approx 10^{-4}$ дпа. Установлено, что спектры КЛ включают только F^+ полосу, независимо от вида ионного облучения. Типичный спектр КЛ, измеренный на образцах, облученных ионами Ne приведен на рис. 4 вместе со спектром, измеренным в процессе облучения этими же ионами. Таким образом, для КЛ спектров $I(F)/I(F^+) \ll 1$, что наблюдается только в случае возбуждения ИЛ ионами Кг. Для объяснения различий в спектрах ИЛ и КЛ предполагается существование только во время облучения неравновесной концентрации нейтральных центров окраски.

В заключении приведены основные результаты, полученные в диссертационной работс.

Основные результаты диссертации

1. Впервые в мире проведены исследования спектров люминесценции монокристаллов α -Al₂O₃ в процессе облучения высокоэнергетическими тяжелыми ионами В, Ne, Ag и Кг ($E > 1$ МэВ/а.е.м.)
2. Показано, что спектральный состав высокоэнергетической ионолу-

минесценции в интервале 2,5–5,6 эВ и температуре 80–300 К определяется внутрицентровыми переходами в F и F^+ -центрах окраски, а также диффузионно-контролируемой рекомбинацией автолокализованных дырок.

3. Определен уровень радиационных повреждений, до которого необходимо учитывать вклад в общую интенсивность люминесценции излучения автолокализованных электронных возбуждений, равный $\approx 10^{-4}$ дпа.

4. Установлено, что соотношение интенсивностей люминесценции F и F^+ -центров уменьшается с ростом плотности ионизационных и ядерных потерь энергии тяжелых ионов высоких энергий.

5. Впервые обнаружено, что выход катодолюминесценции предварительно облученных высокоэнергетическими ионами образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ определяется только излучением F^+ -центров.

Основные результаты диссертации опубликованы в следующих работах:

1. Skuratov V.A., Altynov V.A. and Abu AlAzm S.M. "High energy ion implantation: luminescence studies of solids during irradiation".// Proceedings of the Tenth International Conference on Ion Implantation Technology, Catania, Italy, June 13–17, 1994, p. 914–917.

2. Skuratov V.A., M. Altynov V.A., Abu AlAzm S.M., Didyk A. Yu. "Luminescence spectra from $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ under 1 MeV/amu ion irradiation".// Сообщения Объед. ин-т ядерн. исслед.: E14-95-193 Дубна, 1995, 7 с.

3. Skuratov V.A., Altynov V.A. and Abu AlAzm S.M. "Luminescence studies of sapphire under 1 MeV/amu ion irradiation".// Nucl. Instr. Meth. B, 1996, vol. 107, Nos 1-4, p. 263–267.

4. Altynov V.A, Skuratov V.A. and Abu AlAzm S.M. "1 MeV/amu heavy ion irradiation effects on luminescence of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ".// II International School and Symposium on Physics in Materials Science. September, 17–23, 1995, Jaszowiec, Poland, Abstracts, SC III.2.

5. Skuratov V.A., Altynov V.A. and Abu AlAzm S.M., "Luminescence characterization of radiation damage of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ under 1 MeV/amu ion irradiation".// Seventh International Conference on Fusion Reactor Materials. September 24–29, 1995, Obninsk, Russia, Abstracts, p. 182.

Цитируемая литература

1. AlGhamdi A. and Townsend P.D., "Ion beam excited luminescence of sapphire." J. Nucl. Instr. Meth. B, 1990, vol. 46, p. 335–343.

2. Zinkle S.J., "Microstructure of ion irradiated ceramic insulators." J. Nucl. Instr. Meth. B, 1994, vol. 91, p. 234–246.

Рукопись поступила в издательский отдел
30 апреля 1996 года.