

УДК 539.1.074.5

СПЕКТРОМЕТРЫ НЕЙТРОНОВ И БЫСТРЫХ АТОМОВ ТЕРМОЯДЕРНОЙ ПЛАЗМЫ ТОКАМАКОВ НА ОСНОВЕ СИНТЕЗИРОВАННЫХ CVD АЛМАЗНЫХ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНОК

© 2024 г. А. Н. Кириченко, А. В. Красильников, Н. Б. Родионов*, В. П. Родионова, А. Г. Трапезников, В. П. Ярцев, С. А. Мещанинов, К. К. Артемьев, Р. А. Хмельницкий, В. Н. Амосов

Частное учреждение Государственной корпорации по атомной энергии “Росатом” “Проектный центр ИТЭР”,
Москва, Россия

*e-mail: n.rodionov@iterf.ru

Поступила в редакцию 15.01.2024 г.

После доработки 20.01.2024 г.

Принята к публикации 22.01.2024 г.

Высокая радиационная стойкость, химическая инертность, возможность работать при повышенных температурах, высокие подвижность и эффективность сбора носителей заряда являются важными свойствами алмаза для создания детекторов и спектрометров ионизирующих излучений. В настоящее время обоснованы и разработаны диагностики нейтронов и потоков нейтральных частиц на основе алмазных детекторов для термоядерного реактора ИТЭР. В данной работе представлены результаты исследования методами рамановской спектроскопии и спектроскопии фотолюминесценции электронного качества синтезированных эпитаксиальных алмазных пленок, полученных методом осаждения из газовой фазы в смеси водорода с метаном в реакторе “АРДИС” на легированных бором монокристаллических подложках алмаза. Из отобранных спектрометрическими методами плёнок для подтверждения их электронного качества были изготовлены детекторы и проведены измерения эффективности сбора заряда, энергетического разрешения при облучении альфа-частицами ^{241}Am источника и 14,7 МэВ быстрыми нейтронами ИНГ-07Т2 нейтронного генератора.

Ключевые слова: алмазные пленки, эпитаксия, рамановские спектры, спектры люминесценции, гомоэпитаксиальная структура

DOI: 10.31857/S0367292124040082, **EDN:** QDGBEO

1. ВВЕДЕНИЕ

Высокая радиационная стойкость, химическая инертность, возможность работать при повышенных температурах (до 300 °С), теплопроводность, превышающая теплопроводность меди, высокие подвижность и скорости дрейфа носителей зарядов, являются наиболее важными свойствами алмаза для создания детекторов и спектрометров ионизирующих излучений.

Детекторы с алмазным чувствительным элементом использовались в нейтронной диагностике для регистрации энергетических спектров термоядерных нейтронов на установках токамак [1–3] и для регистрации энергетических спектров быстрых атомов перезарядки горячей плазмы [4].

В настоящее время обосновано применение и разработаны алмазные детекторы для нейтронной диагностики ИТЭР, являющейся одной из ключевых

диагностик термоядерного реактора. Основными задачами нейтронной диагностики в исследованиях термоядерной плазмы являются: контроль термоядерной мощности, измерение флюенса на первой стенке, определение ионной температуры плазмы и профиля нейтронного источника, а также исследование поведения быстрых ионов. В частности, в зону ответственности Российской Федерации входит создание Вертикальной нейтронной камеры (ВНК) — подсистемы нейтронной диагностики ИТЭР, предназначенной для измерения профиля нейтронного источника в полоидальном сечении плазмы токамака с заданным временным разрешением [5, 6].

Условия, в которых будет работать диагностика ВНК:

— плотность потока нейтронов в местах установки детекторов для нижней камеры будет достигать 10^{11} н/см²·с, для верхней камеры — 10^{12} н/см²·с;

- рабочая температура 150 °С;
- технологический прогрев до 250 °С;
- длительность рабочего импульса ~ 400—1000 с.

В соответствии с указанными требованиями материал чувствительного элемента — должен выдерживать длительные радиационные нагрузки, надежно работать в условиях высоких температур (150 °С) и иметь электронное качество для обеспечения спектрометрии нейтронов.

Важнейшим источником информации о поведении тепловых и сверхтепловых ионов в плазме токамака является диагностика потоков атомов перезарядки [7]. Использование алмазного детектора как анализатора быстрых атомов перезарядки перспективно не только благодаря его высокой радиационной стойкости и возможности работы при высоких температурах, но и предельной (100%) эффективности регистрации атомов с обеспечением требуемого энергетического разрешения при высоких нагрузках [8—12].

В настоящее время в России ведется проектирование квазистационарного токамака с реакторными технологиями (ТРТ) [13] с высоким магнитным полем на оси плазменного шнура (до 8 Тл), электромагнитной системой из высокотемпературных сверхпроводников и дейтериевой термоядерной плазмой. Для создания спектрометров для диагностики быстрых атомов на ТРТ представляется перспективным использовать алмазные детекторы с учетом перечисленных выше свойств: радиационная стойкость, высокая чувствительность при регистрации атомов, возможность эксплуатации при высоких температурах [14].

В работе [15] сообщалось о синтезе в “Проектном центре ИТЭР” гомоэпитаксиальных тонких пленок монокристаллического CVD-алмаза толщиной несколько десятков микрон (~ 70 — 80 мкм) на сильно легированных бором (p -типа) НРНТ (high pressure high temperature) подложках, с эффективностью сбора зарядов 92% для альфа-частиц и 91% для нейтронов с энергией 14.7 МэВ. Преимущество тонких пленок, выращенных на борированных подложках, для создания детекторов ионизирующих излучений заключается в том, что с уменьшением толщины пленок их радиационная стойкость увеличивается [16]. В соответствии с [16] допустимый флюенс 14.8 МэВ нейтронов для алмазного кристалла толщиной 0.5 мм составляет 0.9×10^{14} см², а на тонких пленках (~ 50 мкм) флюенс может достигать 10^{15} см². Кроме того, наличие калибровочного источника в корпусе алмазного детектора или в непосредственной близости от него, позволит выполнить корректировку энергетической калибровки канала регистрации алмазного детектора при изменении детекторных свойств чувствительного

алмазного элемента из-за воздействия высоких потоков радиационных излучения. Кроме того, на них можно получить более высокую эффективность сбора заряда, так как на пути движения зарядов количество дефектов, на которых происходит захват носителей заряда, снижается. Детекторы на гомоэпитаксиальных тонких CVD алмазных пленках перспективно использовать для спектрометрии энергичных атомов и альфа-частиц.

2. СИНТЕЗ И ИССЛЕДОВАНИЕ CVD АЛМАЗНЫХ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНОК МЕТОДАМИ РАМАНОВСКОЙ СПЕКТРОСКОПИИ И СПЕКТРОСКОПИИ ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ

В данной работе методом осаждения из газовой фазы в смеси водорода с метаном в реакторе “АР-ДИС” на легированных бором монокристаллических подложках алмаза (концентрация бора ~ 100 ppm) были синтезированы эпитаксиальные алмазные пленки высокого кристаллического совершенства толщиной 75—118 мкм. Для определения структурного совершенства, содержания примесей и электронного качества синтезированных на подложках алмазных пленок проведено их комплексное исследование методами оптической спектроскопии. Подтверждение электронного качества проведено измерением эффективности сбора заряда и энергетического разрешения синтезированных гомоэпитаксиальных CVD алмазных пленок на борированных подложках.

В работе представлены результаты исследования методами рамановской спектроскопии и спектроскопии фотолюминесценции двух образцов эпитаксиальных алмазных пленок толщиной 75 (№ 1) и 180 (№ 2) мкм, полученных методом осаждения из газовой фазы в смеси водорода с метаном в реакторе с СВЧ-плазмой (2.45 ГГц) на легированных бором монокристаллических подложках алмаза (концентрацией бора ~ 100 ppm).

Для получения рамановских спектров и спектров люминесценции был использован конфокальный рамановский спектрометр InViaRamanMicroscope (производство компании Renishaw, Великобритания), имеющий в своем составе микроскоп. Возбуждение спектров осуществлялось лазером с длиной волны излучения 532 нм. Картины фотолюминесценции при возбуждении УФ-излучением были получены с помощью прибора DiamondView.

Рамановский спектр образца № 1 при возбуждении лазером с длиной волны 532 нм представлен на рис. 1.

В рамановских спектрах наблюдаются только линия в области 1332 см⁻¹ — основная алмазная

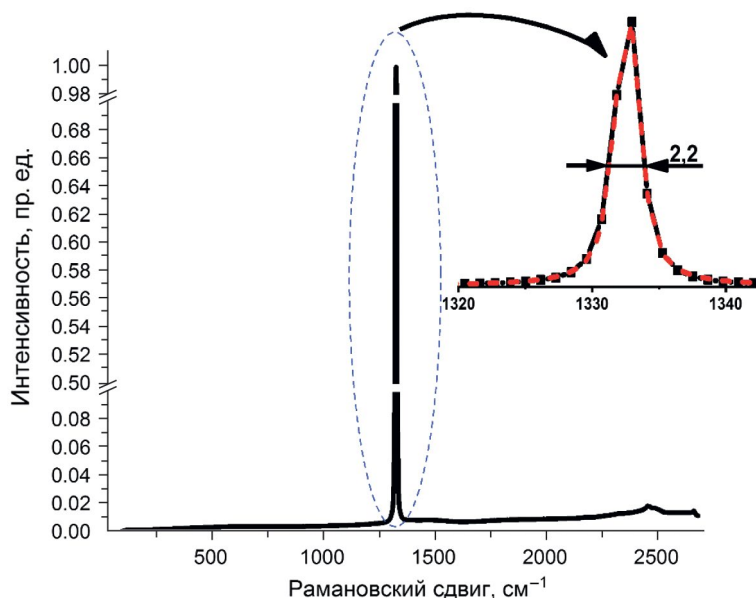


Рис. 1. Рамановский спектр алмазной пленки № 1 при возбуждении лазером с длиной волны 532 нм. На вставке — деконволюция рамановского спектра. Результат деконволюции показан красным цветом, исходный спектр — черным

линия, и спектр ее фоновных повторений в области $2300\text{--}2700\text{ см}^{-1}$ (рис. 1), что демонстрирует наличие только алмазной фазы углерода в образце.

Ширина алмазной линии на половинной высоте является показателем неоднородных напряжений и дефектности кристалла, а ее положение зависит от напряжений, которые возникают в алмазной решетке. Наблюдаемое положение алмазной линии в области 1332.2 см^{-1} и значение полной ширины алмазной линии на половинной высоте (ПШПВ), которое составляет 2.2 см^{-1} (рис. 1), говорит о хорошем кристаллическом совершенстве алмазной структуры и об отсутствии сильных неоднородных напряжений.

Спектроскопия фотолюминесценции (ФЛ) является одной из важных спектроскопических методик, используемых для анализа дефектов и примесей в алмазе и качественной оценки содержания оптически активных примесных центров. Среди наиболее типичных примесных центров окраски в алмазе можно отметить центры азот-вакансия NV, которые дают в спектре две линии бесфонового поглощения (БФЛ) на длинах волны 575 нм (NV^0 центр) и 637 нм (NV^- центр) и кремний-вакансионный центр, имеющий линию бесфонового поглощения в области 738 нм (SiV^- центр). Наличие этих примесей в алмазе приводит к появлению видимой красной люминесценции при освещении ультрафиолетовым источником излучения.

Спектр фотолюминесценции образца № 1 при возбуждении лазером с длиной волны 532 нм пред-

ставлен на рис. 2. Рамановский спектр и спектр фотолюминесценции образца 2 практически полностью совпадали с соответствующими спектрами образца № 1.

В спектре фотолюминесценции наблюдается интенсивная узкая линия в области 574 нм (отмечена на рис. 2 звездочкой) и широкая слабая полоса в области 600—625 нм (отмечены на рис. 2 двумя звездочками) — накладывающийся на спектр люминесценции рамановский спектр алмаза. Узкая линия соответствует линии алмаза первого порядка с максимумом в области 1332 см^{-1} в рамановских спектрах, а широкая слабая полоса — рамановское рассеяние второго порядка. Также в спектре есть широкая бесструктурная полоса в области 630—800 нм (фонные повторения NV^0 и NV^- центров) со слабыми полосами на ее фоне, максимумы которых находятся в области 638 нм (БФЛ NV^- центров) и 738 нм (БФЛ SiV^- центров). Нужно отметить, что оптические центры NV^- и NV^0 отличаются высоким фактором Хуанга—Риса, то есть сильным электрон-фононным взаимодействием. В результате интенсивность БФЛ этих центров мала по сравнению с полосой фоновых повторений.

Малая интенсивность полосы 638 нм (БФЛ NV^- центров), свидетельствует о крайне низком содержании NV^- центров (ориентировочно, содержание NV^- центров меньше 10 ppb).

С помощью прибора DiamondView были получены картины фотолюминесценции при возбуждении УФ-излучением с длиной волны в диапазоне 219—225 нм.

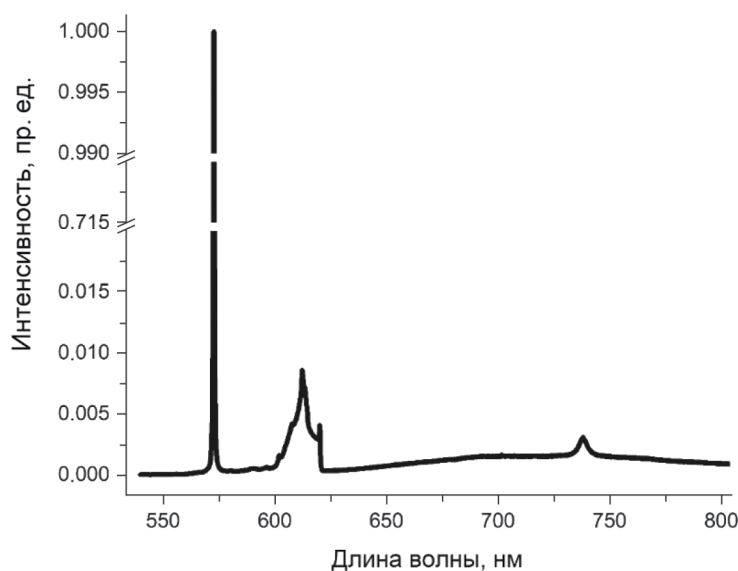


Рис. 2. Спектр фотолюминесценции алмазной пленки № 1 при возбуждении лазером с длиной волны 532 нм.

На картинах фотолюминесценции под ультрафиолетовым облучением в образцах № 1 и № 2 наблюдается крайне низкая интенсивность люминесценции, что свидетельствует о незначительном количестве люминесцирующих примесей.

Таким образом, по данным оптической спектроскопии CVD алмазные пленки обладают низким содержанием примесей в виде азотно-вакансионных центров (менее 5 ppb) и SiV центров (интенсивность бесфоновых линий NV (575 и 637 нм) и SiV (738 нм) центров в 300 раз меньше интенсивности основной алмазной линии) и высоким кристаллическим совершенством (полная ширина алмазной линии на половинной высоте составила 2.2 см^{-1}).

3. ИЗМЕРЕНИЯ ЭФФЕКТИВНОСТИ СБОРА ЗАРЯДА CVD АЛМАЗНЫХ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНОК

Из отобранных спектрометрическими методами плёнок (№ 1 и № 2) для подтверждения их электронного качества были изготовлены представленные на рис. 3 детекторы, у которых были проведены измерения эффективности сбора заряда, рождаемого в алмазе частицами высоких энергий и энергетического разрешения.

Для этого на ростовую сторону пленки и свободную сторону проводящей подложки в магнетронном разряде были нанесены сплошные металлические контакты из платины толщиной 35 нм. Чувствительный элемент с нанесенными контактами монтировался в специальный корпус с прижимными контактами [17]. Измерение амплитудных спектров детекторов было проведено при облучении альфа-частицами источника

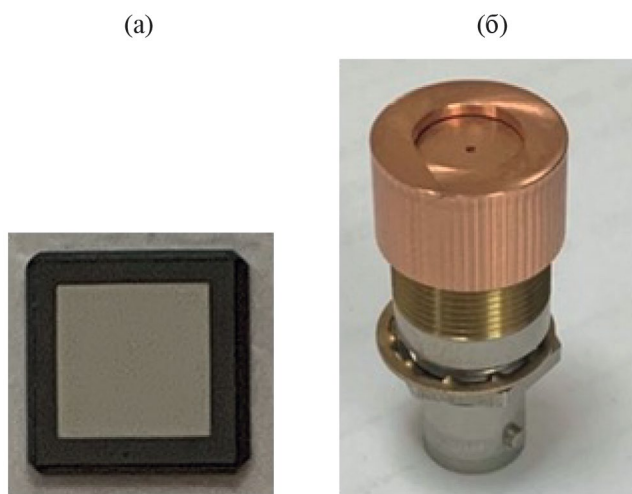


Рис. 3. Чувствительный алмазный элемент с нанесенными контактами (а). Детектор с чувствительным алмазным элементом в корпусе с прижимными контактами (б).

^{241}Am с энергией $\sim 5.5 \text{ МэВ}$ и активностью $\sim 30 \text{ кВк}$ и нейтронами на генераторе ИНГ-07Т2. Ускоряющее напряжение ИНГ-07Т2 составляло 130 кВ при токе 100 мА. Детекторы располагались на расстоянии 5 см от мишени нейтронного генератора, вдоль линии ускоренного дейтерий–третиевого пучка генератора, в потоке нейтронов с энергией $\sim 14.7 \text{ МэВ}$ и плотностью $\sim 1.1 \times 10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$. Время экспозиции было равно 300 с.

Амплитудные спектры детекторов на образцах № 1, № 2 и Е6 при облучении альфа-частицами источника ^{241}Am и ИНГ-07Т представлены на рис. 4 и 5 соответственно.

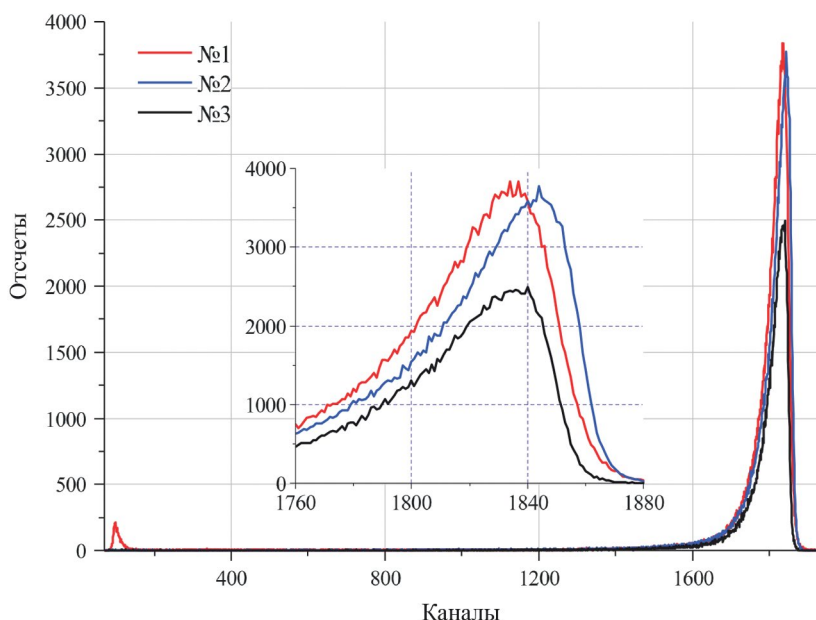


Рис. 4. Амплитудные спектры детекторов на образцах № 1 (красный), и № 2 (синий) и Е6 (№ 3, черный) при облучении альфа-частицами источника ^{241}Am .

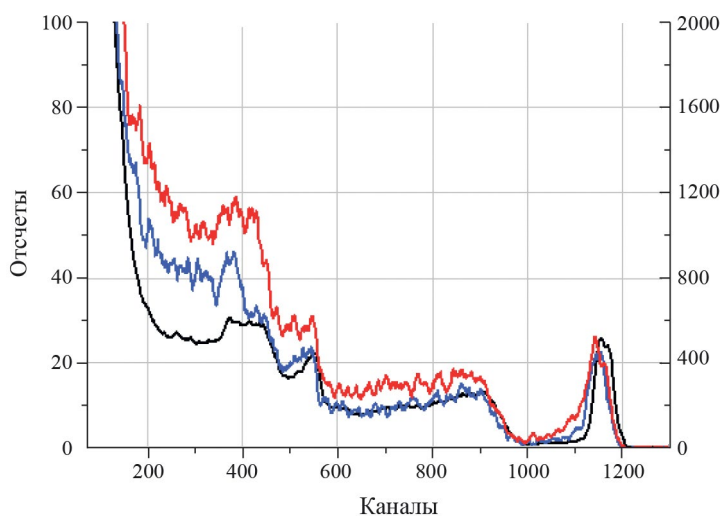


Рис. 5. Амплитудные спектры детекторов на образцах № 1 (красный), и № 2 (синий) и Е6 (черный) при облучении ИНГ-07Т2, 300 с, 5 см до мишени, 130 кВ, 100 мА.

Эффективность сбора заряда (до 97%) и энергетическое разрешение в вакууме (0.8%) детектора были измерены в потоках 5.5 МэВ-ных альфа-частиц (приконтактная генерация носителей). Для 14 МэВ-ных нейтронов (объёмная генерация) эффективность сбора заряда составила (до 97%) с энергетическим разрешением (1.35%), при этом чувствительность по реакции (n, α) не превышала (5.2×10^{-6} н/см²). Современная электронная аппаратура позволяет обрабатывать сигнал при скорости счета не менее 10^6 Гц. Поэтому детектор будет оставаться работоспособ-

ным вплоть до потоков 2×10^{11} н/см². В данной работе показано (табл. 1, 2), что в сравнении с образцом, созданным фирмой Е6, пленки для 14.7 МэВ нейтронов по эффективности сбора заряда и по энергетическому разрешению являются такого же уровня и позволяют создавать детекторы для регистрации ионизирующего излучения в токамаках.

На основе синтезированных CVD алмазных монокристаллических пленках в настоящее время разрабатывается диагностика атомов для токамака ТРТ.

Таблица 1. Эффективности сбора заряда и энергетические разрешения $C(n, \alpha)Be$ -пика при облучении нейтронами от источника ИНГ-07Т2

Образец	Отношение ПШПВ к энергии пика амплитудного спектра детектора в части продуктов $C(n, \alpha)Be$ -реакции, %	Отношение ПШПВ амплитудного спектра к энергии пика ДТ нейтронов ИНГ-07Т2, %	Энергетическое разрешение с учетом уширения нейтронной линии под 0° ИНГ-07Т2 в 2,0 %	Эффективность сбора заряда, %
Eg13	3.75	2.29	1.11	98.00
№ 1	3.96	2.41	1.35	96.90
№ 2	5.52	3.37	2.71	96.65

Примечание: облучение 14,7 МэВ нейтронами.

Таблица 2. Эффективности сбора заряда и энергетические разрешения при облучении альфа-частицами от источника ^{241}Am

Образец	Энергетическое разрешение на воздухе, %	Эффективность сбора заряда, %
Eg13	2.7	97.5
№ 1	2.7	97.3
№ 2	2.8	97.8

Примечание: облучение 5.5 МэВными альфа-частицами.

Полученные результаты по измерению параметров $C(n, \alpha)Be$ -пика при облучении нейтронами от источника ИНГ-07Т2 представлены в табл. 1 и альфа-частицами источника ^{241}Am в табл. 2. Из таблиц видно, что образцы, показавшие хорошие результаты в рамановской спектроскопии и спектроскопии фотолюминесценции имеют эффективность сбора зарядов, генерируемых нейтронами, достигающую 96.9%, альфа-частицами 97.8%.

4. ВЫВОДЫ

Синтезированы гомоэпитаксиальные CVD алмазные пленки на подложках из допированных бором НРНТ-алмазов. Методами оптической спектроскопии (рамановская спектроскопия и фотолюминесценция) установлено, что синтезированные образцы обладают низким содержанием примесей в виде азотно-вакансионных центров (ориентировочно менее 10 ppb) и SiV центров и высоким кристаллическим совершенством (полная ширина алмазной линии на половинной высоте составила 2.2 см^{-1}).

Для подтверждения электронного качества синтезированных образцов CVD алмазных пленок измерены амплитудные спектры созданных из этих пленок детекторов в потоках альфа-частиц с энергией 5.5 МэВ и нейтронов с энергией 14.7 МэВ. Показано, что при облучении альфа-частицами эффективность сбора заряда в синтезированном алмазе достигает 97.8%, а энергетическое разрешение на воздухе составило $\sim 2.7\%$. При облучении нейтронами с энергией

14.7 МэВ эффективность сбора заряда достигала 96.9%, а энергетическое разрешение достигло величины 1.35%, при этом чувствительность по реакции $C(n, \alpha)Be$ не превышала $5.2 \times 10^{-6} \text{ н/см}^2$.

Детекторы ионизирующего излучения на гомоэпитаксиальных тонких CVD алмазных пленках могут быть успешно применены для спектрометрии быстрых атомов и альфа-частиц, а также, для измерения потоков и энергетических спектров ДТ-нейтронов с плотностью более $10^{10} \text{ н/см}^2\text{с}$, что открывает возможности их эффективного применения в исследованиях на современных и будущих термоядерных установках, таких как ИТЭР [5, 6, 11, 12], ТРТ [14], BEST и других.

Работа выполнена в рамках государственного контракта на выполнение НИОКР от 17.04.2023 № Н.4к.241.09.23.1059.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Krasilnikov A. V., Azizov E. A., Khrunov V. S., Roquemore A. L., Young K. M. // Rev. Sci. Instrum. 1997. V. 68 (1). P. 553.
2. Krasilnikov A. V., Amosov V. N., Van Belle P., Jarvis O. N. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2002. V. 476. № 1.
3. Krasilnikov A. V., Nishitani T., Kaneko J., Sasao M. // Fusion Engineering and Design. 1997. V. 34. 35. P. 573.
4. Амосов В. Н., Красильников В. А., Скопинцев Д. А., Мещанинов С. А., Красильников В. А. // Приборы и техника эксперимента. 2008. № 2. С. 108.
5. Борисов А. А., Дерябина Н. А., Родионов Р. Н., Амосов В. Н., Красильников А. В., Рахманов А. Ю., Родионов Н. Б., Немцев Г. Е. // Приборы и техника эксперимента. 2014. № 2. С. 1.
6. Rodionov R., Kumpilov D., Nemtcev G., Bertalot L., Vysokih J. // Fusion Engineering and Design. 2021. V. 173. P. 112874.
7. Афанасьев В. И. Дисс. ... докт. физ.-мат. наук. СПб: ФТИ им. А. Ф. Иоффе, 2010.

8. Красильников В. А. Дисс. ... канд. физ.-мат. наук. М.: ТРИНИТИ, 2013.
9. Alekseyev A. G. // Rev. Sci. Instrum. 2003. V. 74. P. 1905.
10. Родионов Н. Б., Амосов В. Н., Артемьев К. К., Мещанинов С. А., Родионова В. П., Хмельницкий Р. А., Дравин В. А., Большаков А. П., Ральченко В. Г. // Атомная энергия. 2016. Т. 121. № 2.
11. Артемьев К. К., Родионов Н. Б., Амосов В. Н., Красильников В. А., Мещанинов С. А., Родионова В. П., Кедров И. В., Кузьмин Е. Г., Петров С. Я. // Приборы и техника эксперимента. 2019. № 3. С. 63.
12. Амосов В. Н., Родионов Н. Б., Дравин В. А., Артемьев К. К., Мещанинов С. А. // Приборы и техника эксперимента. 2017. № 1. С. 120.
13. Красильников А. В., Коновалов С. В., Бондарчук Э. Н., Мазуль И. В., Родин И. Ю., Минеев А. Б., Кузьмин Е. Г., Кавин А. А., Карпов Д. А., Леонов В. М., Хайрутдинов Р. Р., Кукушкин А. С., Портнов Д. В., Иванов А. А., Бельченко Ю. И., Денисов Г. Г. // Физика плазмы. 2021. Т. 47. С. 970.
<https://doi.org/10.31857/S0367292121110196>
14. Артемьев К. К., Красильников А. В., Кормилицын Т. М., Родионов Н. Б. // Физика плазмы. 2022. Т. 48. С. 1183
15. Красильников А. В., Родионов Н. Б., Большаков А. П., Ральченко В. Г., Вартапетов С. К., Сизов Ю. Е., Мещанинов С. А., Трапезников А. Г., Родионова В. П., Амосов В. Н., Хмельницкий Р. А., Кириченко А. Н. // ЖТФ. 2022. Т. 92. С. 596.
16. Verona-Rinati G. Dipartimento di Ingegneria Industriale Università di Roma "Tor Vergata" Radiation hard Diamond Detectors in Schottky diode, 2018 // ITER-HQ, Cadarache, France, 2018.
17. Амосов В. Н., Мещанинов С. А., Родионов Н. Б. // Прикладная физика. 2011. № 4. С. 104.

Spectrometers of Neutrons and Fast Atoms of Tokamak Thermonuclear Plasma Based on CVD Synthesized Diamond Single-Crystal Films

A. N. Kirichenko^a, A. V. Krasilnikov^a, N. B. Rodionov^{a,*}, V. P. Rodionova^a,
A. G. Trapeznikov^a, V. P. Yartsev^a, S. A. Meshchaninov^a, K. K. Artemev^a,
R. A. Khmel'nitskii^a, V. N. Amosov^a

^a Private Institution "ITER-Center," Moscow, 123098, Russia

* e-mail: n.rodionov@iterrf.ru

High radiation resistance, chemical inertness, the ability to operate at elevated temperatures, high mobility and efficiency of charge-carrier collection are important properties of diamond for designing detectors and spectrometers of ionizing radiation. Currently, diagnostics of neutrons and neutral particle fluxes based on diamond detectors for the ITER thermonuclear reactor are justified and developed. This work presents the results of a Raman spectroscopy and photoluminescence spectroscopy study of the electronic quality of synthesized epitaxial diamond films obtained by vapor deposition in a hydrogen and methane mixture in the ARDIS reactor on boron-doped single-crystal diamond substrates. To confirm their electronic quality, detectors have been made from films selected by spectrometric methods and the charge collection efficiency and energy resolution have been measured when irradiated with alpha particles from a 241Am source and 14.7 MeV fast neutrons from the ING-07T2 neutron generator.

Keywords: diamond film, epitaxy, Raman spectra, luminescence spectra, homoepitaxial structure