

ДОСЛІДЖЕННЯ ДОЗОВИХ І ЕНЕРГЕТИЧНИХ ЗАЛЕЖНОСТЕЙ ВИХОДУ ТЕРМОСТИМУЛЬОВАНОЇ ЛЮМІНЕСЦЕНЦІЇ МОНОКРИСТАЛІВ $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ ТА $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Ag}$

В.І.Лямаєв, В.М.Головей

Інститут електронної фізики НАН України,
вул. Університетська, 21, Ужгород, 88000
e-mail: victor_uzhg@yahoo.com

Досліджено енергетичні та дозові залежності виходу термостимульованої люмінесценції (ТСЛ) монокристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Ag}$ в інтервалі енергій 59–1332 кеВ та в інтервалі доз 1–1000 мГр. Встановлено, що в області енергій до 100 кеВ спостерігається більше значення чутливості в порівнянні з теоретично розрахованим. Дозові залежності виходу ТСЛ при опроміненні від ізотопу ^{60}Co в інтервалі 1–1000 мГр виявились лінійними.

Для визначення поглинутої дози іонізуючого випромінювання в дозиметрії (персональній, клінічній, доквілля тощо) широко застосовується метод термостимульованої люмінесценції (ТСЛ) [1]. Одним з широкоживаних термолюмінесцентних фосфорів для виготовлення дозиметрів є тетраборат літію $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (ЛТВ). Дозиметричні системи з його застосуванням знайшли використання в багатьох державах Європейської співдружності [2], а також у США та Японії. На сьогоднішній день кращі характеристики отримано на кристалічному ЛТВ:Cu. Його перевагами є найкраща серед дозиметричних матеріалів тканиноеквівалентність [1] та лінійність характеристик у широкому інтервалі доз і енергій [3–5]. Так, зокрема, широкого розповсюдження набув дозиметр типу UD-802 фірми Panasonic, до складу якого входять два детектори ЛТВ:Cu [3].

У персональній дозиметрії однією з вимог, що висуваються до термолюмінесцентного детектора, є максимальна наближеність енергетичної залежності його чутливості до такої для біологічної тканини (тканиноеквівалентність) [6]. Повністю даної вимоги не задовольняє жоден із існуючих на теперішній час термо-

люмінофорів, тому можна казати лише про більшу або меншу наближеність до неї в певному інтервалі енергій опромінення. Як впливає з теоретичних розрахунків [1], найбільше відхилення від лінійності для енергетичної залежності чутливості детекторів спостерігається в області енергій до ~100 кеВ, причому величина цього відхилення тим менша, чим краще задовольняється умова тканиноеквівалентності. Для ЛТВ вона є однією з найкращих серед відомих термолюмінофорів [4]. У той же час, як впливає з даних експериментальних досліджень, у певних випадках енергетична залежність виходу ТСЛ може не співпадати з результатами теоретичних розрахунків навіть для складів, що мають однакову матричну основу, а різняться домішковим складом, що зумовлено особливостями дефектної структури речовини [1, 7]. Так, зокрема, суттєво різняться енергетична залежність чутливості для детекторів $\text{LiF}:\text{Mg},\text{Ti}$ та $\text{LiF}:\text{Mg},\text{Cu},\text{P}$ в діапазоні енергій 10–100 кеВ [1]. Більше того, із зростанням дози опромінення для деяких термолюмінофорів спостерігалось не лише відхилення від лінійності дозової залежності чутливості, але й зміна форми кривої термовисвічування (КТВ) [4].

Відомо [8], що для детекторів, виготовлених у вигляді пресованих полікристалічних таблеток, характерний такий загальний недолік, як відчутний фоновий сигнал, який обумовлений значною площею поверхні, що межує з навколишньою атмосферою. Для монокристалічних зразків цей ефект значно менший завдяки малій поверхні взаємодії та прозорості в широкій області спектру, внаслідок чого досягаються малі значення фонового сигналу та збільшення інтенсивності ТСЛ. З іншого боку, застосування монокристалічних детекторів обмежується труднощами одержання однорідних за чутливістю легованих монокристалів. Якщо властивості $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$, легованого Cu , на сьогоднішній день добре вивчено [3–5, 9], то дослідження дозиметричних характеристик монокристалічного LTB , легованого Mn або Ag , залишається актуальною проблемою.

Вихідну шихту для вирощування монокристалів LTB:Ag і LTB:Mn отримували сплавленням стехіометричної кількості оксиду бору B_2O_3 ОСЧ 12-3 і карбонату літію Li_2CO_3 ОСЧ 20-2, а також 0,2 мол.% AgNO_3 або 0,3 мол.% MnO_2 марки ХЧ у платиновому тиглі на повітрі. Для зменшення втрат на випаровування оксиду бору під час росту у шихту додатково вводили до 0,2–0,3 мол.% оксиду бору. Монокристали вирощували за методом Чохральського в напрямку [100] при швидкості витягування $3 \cdot 10^{-3}$ м/добу та швидкості обертання 4,4 об/хв. Концентрація легуючої домішки, визначена за допомогою атомно-адсорбційного аналізу, становила 0,075 ваг.% Ag та 0,023 ваг.% Mn . Вимірювання ТСЛ проводили на неорієнтованих зразках розмірами $6 \times 6 \times 1$ мм³, поверхні яких шліфували і полірували.

Для дослідження дозової залежності виходу ТСЛ монокристалічних зразків LTB:Ag і LTB:Mn було проведено серію опромінь в діапазоні 1–1000 мГр від ізотопу ^{60}Co при потужності дози 10 мГр/год. Щоб зменшити похибку визначення поглинутої дози при кожному опроміненні, його геометрія залишалась

постійною, а змінювали лише час експозиції від 5 хвилин до 4 діб. Для визначення енергетичної залежності чутливості зразки опромінювали в радіаційних полях ізотопів ^{241}Am (основна лінія 59 кеВ), $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (140 кеВ), ^{137}Cs (662 кеВ) та ^{60}Co (1,17 МеВ і 1,33 МеВ) на спеціальному стенді. При кожному опроміненні поглинута доза становила 10 мГр.

Реєстрацію інтегральної ТСЛ проводили відразу ж після опромінення на розробленій нами автоматизованій на базі комп'ютера установці. На даній установці можна здійснювати лінійне нагрівання зразків до 500 °С зі швидкостями в діапазоні 0,1–10 град/с при відтворюваності режимів не гірше 1 %. Для зменшення різниці температур між контрольною термопарою і досліджуванним зразком, а також для мінімізації градієнту температури по об'єму зразків усі виміри проводили при відносно невеликій швидкості лінійного нагрівання 3 град/с. Реєстрацію люмінесцентного випромінювання здійснювали методом лічби фотонів, використовуючи фотоелектронний помножувач (ФЕП) ФЭУ-136. Особливу увагу приділяли розширенню діапазону лінійності системи реєстрації люмінесценції в бік високих інтенсивностей. Завдяки застосуванню запропонованої в роботі [10] схеми підсилювача-дискримінатора одноелектронних імпульсів ФЕП та введенню програмних поправок вдалося розширити область лінійності до $3 \cdot 10^7$ імп/с. Для зменшення впливу теплового випромінювання зразків та нагрівача перед вікном ФЕП було встановлено синьо-зелений світлофільтр СЗС-21, смуга пропускання якого становить 320–620 нм, що і визначає спектральний діапазон чутливості установки. В ролі опорного джерела світла для ФЕП використано синій світлодіод. Розроблене програмне забезпечення дозволяє повністю автоматизувати процес термовисвічування та відпалу зразків і запису КТВ у файли.

Відносну чутливість зразків LTB:Ag і LTB:Mn визначали як співвідношення ви-

соти їх високотемпературного піка до висоти дозиметричного піка детекторів ДТГ-4 (LiF:Mg,Ti), опромінених такою ж дозою при тотожних умовах. Враховуючи енергетичну залежність чутливості детекторів LiF:Mg,Ti, яка є добре вивченою [11], ми побудували аналогічну залежність для досліджуваних монокристалів. Кожний експеримент проводили на 5 монокристалічних зразках з однаковою концентрацією легуючої домішки. Одержані дані усереднювали і похибку визначали за стандартною процедурою.

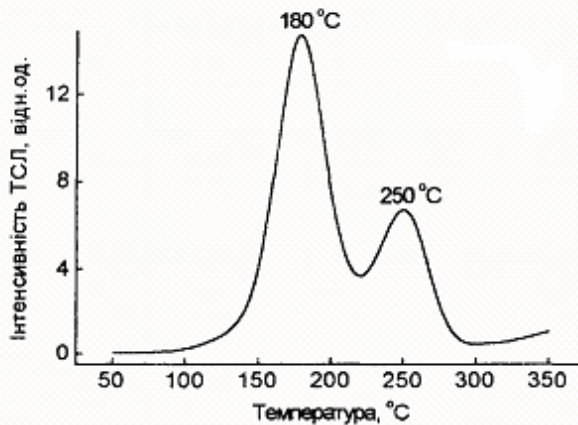


Рис. 1. Крива ТСЛ монокристала $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Ag}$, опроміненого дозою 0,3 Гр від джерела ^{60}Co .

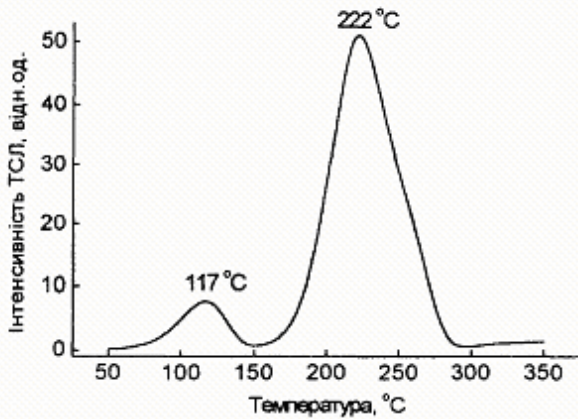


Рис. 2. Крива ТСЛ монокристала $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$, опроміненого дозою 0,3 Гр від джерела ^{60}Co .

Люмінесцентні властивості зразків добре відтворювалися впродовж багато-

разових циклів “відпал-опромінення-висвічування”. Так, у межах досліджуваної партії температурне положення максимумів ТСЛ відрізнялось не більше як на $\pm 3^\circ\text{C}$. На рис. 1, 2 наведено типові КТВ, одержані для монокристалічних зразків LTB:Ag і LTB:Mn, опромінених дозою 0,3 Гр від джерела ^{60}Co . Як видно з рисунків, для монокристалів LTB:Ag характерна наявність двох чітко виражених максимумів при 180°C і 250°C . Для монокристалів LTB:Mn можна виділити два максимуми при 117°C і 222°C , причому другий є складним і складається як мінімум з двох елементарних піків, а його інтенсивність приблизно в 3 рази вища, ніж у першого максимуму ТСЛ зразків LTB:Ag.

Дозові залежності виходу ТСЛ монокристалів LTB:Ag, визначені з інтенсивності окремо 1-го та 2-го максимумів КТВ, наведено на рис. 3. Як видно, вони є майже лінійними, а певні відхилення спостерігаються лише при дозах до 1 мГр для першого та до 10 мГр для другого максимумів. Подібні відхилення можна пояснити накладанням на сигнал ТСЛ фонового свічення зразків при нагріванні. Величина цього фонового сигналу фактично і визначає нижній поріг чутливості, що близький до 1 мГр.

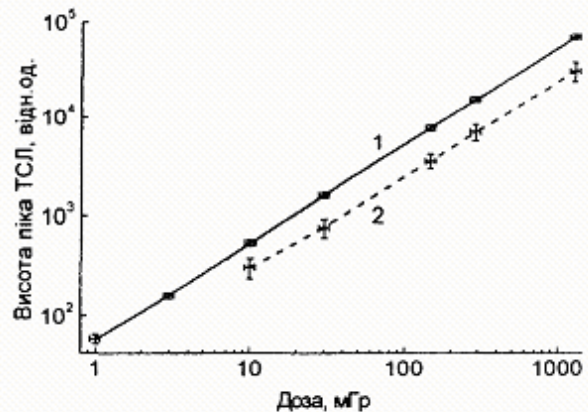


Рис. 3. Дозова залежність відносної чутливості монокристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Ag}$, визначена з інтенсивності першого (1) та другого максимуму КТВ (2).

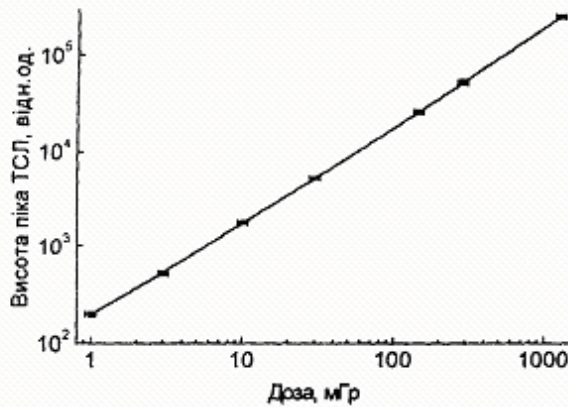


Рис. 4. Дозова залежність відносної чутливості монокристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$.

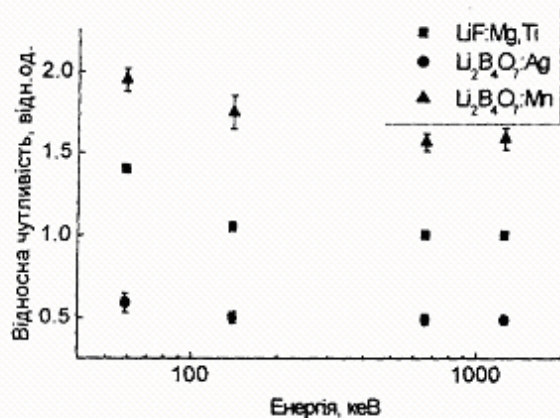


Рис. 5. Енергетична залежність відносної чутливості детекторів LiF:Mg,Ti та монокристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Ag}$, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ (для наочності чутливість $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Ag}$, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ наведено збільшеною в 10 раз).

Визначення дозової та енергетичної залежностей чутливості зразків LTB:Mn проводили тільки з інтенсивності високотемпературного піку, оскільки в умовах довготривалого опромінювання від джерел з малою потужністю дози низькотемпературний центр захоплення частково релаксував. Дозову залежність наведено на рис. 4. Як видно, вона також є майже лінійною, а певні відхилення спостерігаються лише при дозах до 1 мГр, що також пов'язано з накладанням фонового свічення зразків

при нагріванні. За рахунок цього нижній поріг чутливості також близький до 1 мГр.

При дослідженні енергетичної залежності виходу ТСЛ було виявлено, що форма КТВ для монокристалічних зразків LTB:Ag і LTB:Mn , опромінених від радіоактивних джерел з різним спектром випромінювання, не змінювалась. У той же час має місце виражена залежність чутливості від енергії γ -випромінювання як для еталонних детекторів LiF:Mg,Ti , так і для монокристалів LTB:Mn , LTB:Ag . Дані таких вимірів у відносних одиницях наведено на рис. 5. Оскільки досліджувані зразки значно поступаються за чутливістю детекторам LiF:Mg,Ti , то для наочності результати для LTB:Ag , LTB:Mn представлено на графіку збільшеними в 10 разів. Одержані експериментально конкретні значення відносної чутливості в області енергій до 100 кеВ виявились дещо більшими від розрахованих [4], а характер енергетичної залежності чутливості – схожим з таким для монокристалічних детекторів LiF:Mg,Ti . З цього випливає, що розрахункові дані стосовно енергетичної залежності чутливості термолюмінесцентних матеріалів (перш за все в області енергій до 100 кеВ) хоч і дозволяють дати їй оцінку в першому наближенні, але потребують корекції за результатами експериментальних досліджень, причому величина відхилень залежить не лише від параметрів вихідної матриці, а й від типу домішок. В останньому випадку це може бути пояснено як особливостями взаємодії γ -випромінювання з простими та складними дефектами, обумовленими наявністю легуючої домішки, так і особливостями енергетичного спектру локальних рівнів дефектів, що спричинюють різний характер релаксації збудження кристалічної ґратки.

Література

1. S.W.S.McKeewer, M.Moskovitch, P.D.Townsend, Thermoluminescence dosimetry materials: properties and uses (Nuclear Technology Publishing, Ashford, 1995).
2. J.W.E.van Dijk, J.M.Bordy, F.Vanhavere et al., Radiation Protection Dosimetry 89, 53 (2000).
3. B.Ben-Shachar, G.L.Katchen, J.M.Hoffman, Radiation Protection Dosimetry 27, 121 (1989).
4. N.Nariyama, S.Tanaka, Y.Nakane et al., Radiation Protection Dosimetry 74, 155 (1997).
5. J.C.Saez-Vergara, J.M.Gomez-Ros, A.Delgado, Radiation Protection Dosimetry 47, 327 (1993).
6. К.К.Шварц, Я.Ж.Кристансон, Д.Ю.Лусис и др., в сб.: Люминесценция и дефекты в ионных кристаллах (Рига, 1967), с. 179–257.
7. M.Moskovitch, Radiation Protection Dosimetry 85, 49 (1999).
8. А.И.Непомнящих, С.Н.Мироненко, Г.П.Афонин и др., Атомная энергия 58, 257 (1985).
9. В.М.Хунда, Р.Р.Пука, А.М.Соломон, В.М.Холовей, Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics 3, 227 (2000).
10. В.Г.Корнилов, А.В.Крылов, Астрономический журнал 67, 173 (1990).
11. N.Nariyama, S.Tanaka, M.Yoshizawa et al., Radiation Protection Dosimetry 49, 451 (1993).

**ENERGY AND DOSE RESPONSES OF
THERMOLUMINESCENCE OF $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ AND
 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Ag}$ SINGLE CRYSTALS**

V.I.Lyamayev, V.M.Holovey

Institute of Electron Physics, Ukr. Nat. Acad. Sci.,
Universytetska St. 21, Uzhhorod, 88000
e-mail: victor_uzhg@yahoo.com

Energy and dose responses of thermoluminescence of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Ag}$ single crystals are studied in the energy range 59–1332 keV and dose range 1–1000 mGy. The response in the energy range below 100 keV was found to exceed the calculated dependence. The dose responses within 1–1000 mGy range for ^{60}Co gamma rays are linear.