

УДК 538.935

ОПТИЧЕСКОЕ СТИРАНИЕ ДОЗОВОЙ ИНФОРМАЦИИ У ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ДЕТЕКТОРОВ ТЛД-580Н

© 2022 г. И. А. Захарчук¹, А. С. Селюков^{1,2,3}, М. И. Данилкин^{3,4}, О. В. Ивкина⁵, И. В. Мосягина⁵

¹ МГТУ им. Н.Э. Баумана, Москва, 105005 Россия

² Московский политехнический университет, Москва, 107023 Россия

³ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, 117485 Россия

⁴ Московский физико-технический институт, Долгопрудный, Московская область, 141701 Россия

⁵ АО “СНИИП”, Москва, 123060 Россия

*e-mail: zakharchukia@yandex.ru

Поступила в редакцию 01.08.2022 г.

После доработки 02.08.2022 г.

Принята к публикации 09.08.2022 г.

На основании исследования спектров термолюминесценции и фотолюминесценции, предложен механизм термолюминесценции для $MgB_4O_7:Dy,Na$, который аналогичен описанному ранее механизму для $MgB_4O_7:Tm$. Основной рабочий пик термолюминесценции связан с освобождением дырок из дырочного центра захвата. Исследован фединг под действием света (365, 395 и 470 нм) у термолюминесцентных детекторов на основе $MgB_4O_7:Dy,Na$ (ТЛД-580Н). Уничтожение пиков термолюминесценции не сопровождается оптически стимулированной люминесценцией. Согласно предложенной модели, свет освобождает электроны, которые рекомбинируют с дырками на дырочных ловушках, после чего термолюминесценция становится невозможной.

Ключевые слова: термолюминесценция, дозиметрия, оптически стимулированная люминесценция, тетраборат магния, $MgB_4O_7:Dy,Na$

DOI: 10.56304/S2304487X22020134

ВВЕДЕНИЕ

Термолюминесцентные детекторы (ТЛД) давно уже используются для контроля облучения персонала, работающего с ионизирующими излучениями. Общий принцип их действия достаточно прост: при поглощении радиации в материале детектора образуются электроны (в зоне проводимости) и дырки (в валентной зоне), часть которых рекомбинирует сразу, давая радиолюминесценцию, а другая часть захватывается на соответствующие ловушки. Захваченные на ловушках носители заряда могут храниться там месяцами, а при нагревании высвобождаются и рекомбинируют на центрах свечения, что сопровождается термостимулированной люминесценцией (ТСЛ). Интегральная интенсивность ТСЛ пропорциональна накопленной дозе радиации.

Помимо основного свойства “отложенной” люминесценции для ТЛД важен целый ряд параметров, обеспечивающих удобство и надежность измерений. Так, площадь под низкотемпературными пиками на кривой ТСЛ должна быть мала по сравнению с площадью под основным рабочим пиком, чтобы потери информации при хранении детектора (называемые федингом) были

минимальными. У ряда детекторов потери информации на свету значительно увеличиваются [1, 2], и более того, для нескольких известных детекторов была продемонстрирована возможность оптической стимуляции для их считывания [3, 4], то есть, детекторы обладают оптически стимулированной люминесценцией (ОСЛ). С одной стороны, это свойство может быть полезным для создания компактных считывателей, хотя это и не всегда просто реализовать из-за наличия дополнительного рекомбинационного барьера [5]. С другой стороны, усиление фединга под действием света требует соблюдать предосторожности при работе с ТЛД обычным способом, не допуская их засветки, особенно если перенос ТЛД из корпуса дозиметра в считыватель выполняется вручную. Таким образом, обе стороны этой медали требуют своего изучения для обеспечения надежных и точных измерений.

Есть еще одно важное свойство ТЛД, называемое тканеэквивалентностью. Если детектор должен работать в смешанных радиационных полях, то очень важно, чтобы его отклик на ионизирующие излучения разных типов и энергий был максимально приближен к характеру взаимодействия

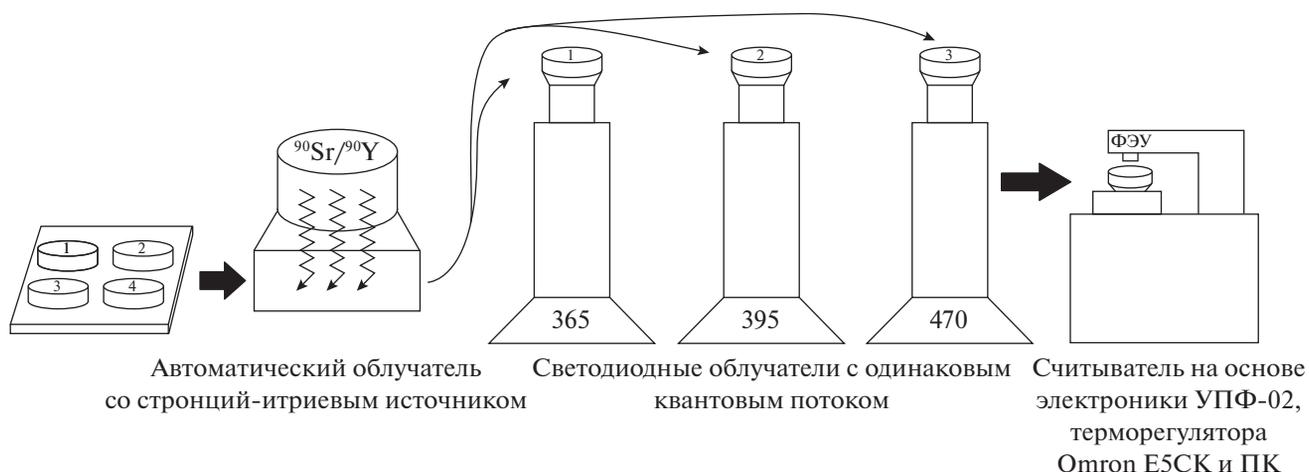


Рис. 1. Схема установки, использовавшейся для исследования оптического стирания пиков ТСЛ.

этих излучений с человеческими тканями [6]. Для этого выбирают материалы с низким эффективным зарядом ядра, среди которых одними из лучших оказались бораты лития и магния.

Наше исследование выполнено для детекторов ТЛД-580Н, представляющих собой тетраборат магния, легированный диспрозием и натрием ($\text{MgB}_4\text{O}_7: \text{Dy, Na}$). Этот материал не только обладает приемлемой тканеэквивалентностью, но и позволяет измерять дозу от излучений с низкими энергиями и малой глубиной проникновения в ткани. Поэтому в персональной дозиметрии ТЛД-580Н могут использоваться в качестве так называемых “кожных детекторов”. В качестве же технического применения таких детекторов интересен мониторинг дозы рентгеновского излучения низких энергий, включая исследования пространственного распределения излучения при контроле рентгеновской оптики и при изучении процессов деградации рентгеновских линз.

1. МАТЕРИАЛЫ И ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Детекторы ТЛД-580Н были изготовлены в лаборатории детекторов АО “СНИИП” методом длительного прокалывания предварительно растворенных в кислой среде нитрата магния (х.ч.), оксида диспрозия (для люминофоров), сульфата натрия (х.ч.). Борная кислота (х.ч.) добавлялась в горячий раствор, раствор медленно выпаривался при непрерывном перемешивании. После полного выпаривания и сушки в течение не менее 12 часов, исходная шихта прокалывалась при 800°C в течение 12–15 часов. Полученный люминофор наносился с использованием специального высокотемпературного лака в алюминиевые чашечки с внешним диаметром 5 мм, а для исследования

спектрального состава ТСЛ использовались чашечки с внешним диаметром 10 мм.

Детекторы облучались источником БИС-20 ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) в автоматическом облучателе. Доза облучения за 20 минут составляла 0.66 Гр ($0.033 \pm \pm 0.002 \text{ Гр/мин}$, калибровка проводилась по известной дозе от эталонного источника ^{137}Cs в метрологическом отделе АО “СНИИП”). Для повышения скорости накопления данных при каждом облучении использовалась серия из четырех детекторов. Один детектор использовался для снятия контрольной кривой ТСЛ, а каждый из трех оставшихся детекторов затем подвергался воздействию светом от “своего” светодиода (365, 395, 470 нм). Кривые ТСЛ считывались в лаборатории детекторов АО “СНИИП” с помощью автоматизированного считывателя, изготовленного на базе механики и электроники (ФЭУ с источником питания и преобразователем сигнала) от считывателя УПФ-02, а также терморегулятора OMRON E5CK и персонального компьютера. Скорость нагрева составляла 0.5 град/с . Чувствительность считывателя контролировалась по сигналу от светосостава постоянного действия (СПД), измерения начинались только после достаточного прогрева прибора, когда сигнал от СПД стабилизировался на заданном уровне. Светодиоды были выведены на одинаковый поток квантов света ($3.5 \times 10^{15} \text{ фот/с}$) с помощью регулируемых стабилизаторов тока (LM317), для чего предварительно были измерены токовые зависимости мощности излучения и спектры свечения каждого из светодиодов. Методика и установки, использованные в АО “СНИИП” для изучения оптического стирания кривых ТСЛ, схематически изображены на рис. 1.

Для регистрации спектров при прохождении пиков ТСЛ использовались детекторы большого диаметра (10 мм), которые возбуждались порта-

тивным ускорителем электронов РАДАН-ЭКСПЕРТ (энергия электронов 90–240 кэВ, длительность импульса 2 нс, флюэнс 5×10^{11} электронов за 1 импульс). Измерения проводились с помощью считывателя термолюминесцентных детекторов ДВГ-2М (НПП “Доза”). Считыватель доработали, защитив ФЭУ и обеспечив измерения спектров при ТСЛ. ФЭУ (9924В, спектральный диапазон 290–650 нм) диафрагмировали примерно 1:50. Между ФЭУ и нагревателем поместили вставку с кварцевыми линзой и световодом, так что часть светового потока направлялась на портативный спектрометр Ocean Optics Maya2000Pro. Спектрометр был синхронизирован с записью кривой ТСЛ по концевому выключателю механизма подъема нагревателя, после чего непрерывно записывал спектральный состав пиков ТСЛ в диапазоне 230–1000 нм. Скорость нагрева 2 град/с и большая доза радиации обеспечивали световые потоки, достаточные для проведения измерений с учетом чувствительности спектрометра. Для измерения кривой ТСЛ было достаточно одного импульса электронного ускорителя (~ 2 кГр/см²), а для измерения спектрального состава пиков ТСЛ требовалось 2–4 таких импульса.

Спектры люминесценции при оптическом возбуждении и спектры при оптической стимуляции измерялись с помощью спектрофлуориметра Hitachi 650–60 и того же портативного спектрометра Ocean Optics Maya2000Pro. Для возбуждения (и стимуляции) использовались ксеноновая лампа и монохроматор канала возбуждения прибора Hitachi 650–60, а спектры люминесценции записывались с помощью спектрометра Ocean Optics Maya200Pro во всем его спектральном диапазоне.

2. КРИВАЯ ТСЛ, ЕЕ СПЕКТРАЛЬНЫЙ СОСТАВ И МЕХАНИЗМ СВЕЧЕНИЯ

На рис. 2 показана кривая ТСЛ и спектр свечения (на врезке) при прохождении основного пика (около 470 К, пик 1). Сравнение этого спектра со спектром люминесценции Dy^{3+} в свинцовых теллуридо-боратных стеклах [7] позволяет заключить, что при ТСЛ светит именно Dy^{3+} . В то же время, наши попытки получить люминесценцию Dy^{3+} при оптическом возбуждении в характерных для него полосах возбуждения не увенчались успехом. Следовательно, Dy^{3+} возникает в процессе ТСЛ и отсутствует в нашем тетраборате магния до его облучения ионизирующими излучениями. Подобное поведение было обнаружено ранее у туллия в тетраборате магния [8]. Было показано, что Tm^{3+} светит в MgB_4O_7 при ТСЛ, но при этом его фотолюминесценция отсутствует до облучения образца ионизирующими излучениями. Одновременно методом ЭПР было показано, что ос-

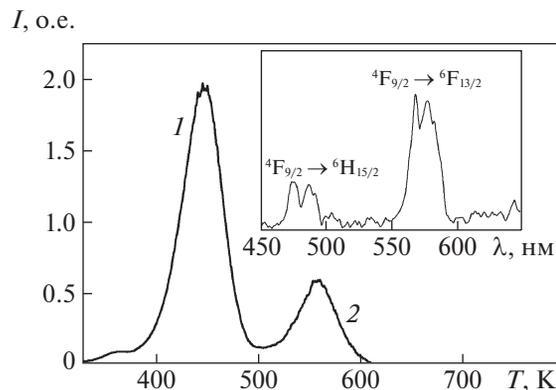


Рис. 2. Кривая ТСЛ для $MgB_4O_7: Dy, Na$ (ТЛД-580Н), содержащая низкотемпературный пик 1 и высокотемпературный пик 2. На врезке: спектр свечения образца при термической стимуляции.

новной рабочий пик ТСЛ около 470 К совпадает с освобождением дырок из дырочной ловушки VO_3^{2-} [8]. Для объяснения этих результатов авторами была предложена модель, согласно которой туллий преобладает в тетраборате магния в состоянии $2+$, но при повышении температуры и освобождении дырок из ловушек может захватывать мигрирующие дырки с энергетической выгодой, которая позволяет туллию после перезарядки в состоянии $3+$ оказаться в возбужденном состоянии. После этого он высвечивает энергию, оставаясь в состоянии $3+$ [8]. Возврат в исходное состояние $2+$ происходит при более высокой температуре, после освобождения электронов захваченных в различных ловушках, и этот процесс происходит, скорее всего, безызлучательно. Схематически эта модель представлена на рис. 3. Судя по нашим данным, диспрозий в тетраборате магния ведет себя точно таким же образом.

3. ОПТИЧЕСКОЕ СТИРАНИЕ ПИКОВ ТСЛ И ОТСУТСТВИЕ ОСЛ

На рис. 4 показано уменьшение площади под пиками ТСЛ (остаточная светосумма) как функция времени воздействия светом. Поскольку квантовый поток каждого из светодиодов был нормирован на величину 3.5×10^{15} фот/с, можно утверждать, что ультрафиолетовый свет (365 нм) менее эффективен в стирании пиков ТСЛ, чем синий свет (470 нм). Причин у этого может быть несколько. Во-первых, глубина проникновения ультрафиолетового света в детектор может быть меньше, особенно если часть света поглощается связующим лаком, — этот вопрос нами дополнительно не исследовался.

Однако есть и другое возможное объяснение. Поскольку все кривые уменьшения площади под пиками имеют вид экспоненты с ненулевой

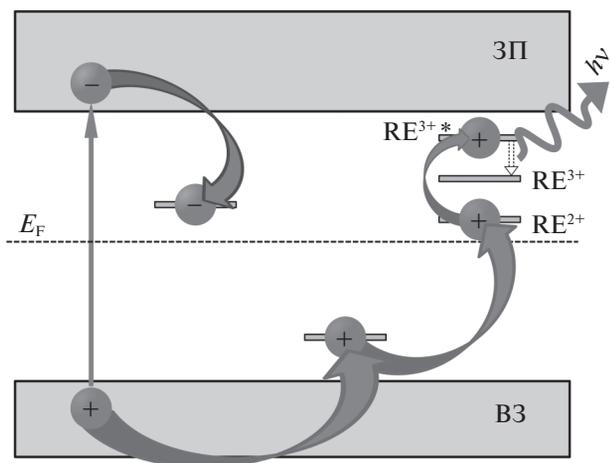


Рис. 3. Схематическое представление процесса люминесценции с перезарядкой редкоземельных элементов. Слева направо показаны: рождение электрона в зоне проводимости (ЗП) и дырки в валентной зоне (ВЗ) (вертикальная стрелка), перенос и захват носителей заряда на ловушки (фигурные стрелки), захват дырки на РЗЭ и его перезарядка с возбуждением и последующим высвечиванием энергии.

носителей заряда из ловушки требуется довольно точное попадание по энергии, чтобы носители заряда оказались эффективно делокализованы и могли переноситься по кристаллу. Возможно, синий свет обеспечивает лучшее соответствие по энергии для обеспечения транспорта носителей.

Поскольку оптическое стирание пиков ТСЛ оказалось довольно эффективным, мы проверили наличие ОСЛ при воздействии на детекторы света с теми же длинами волн, что и при оптическом стирании. Люминесценция Dy^{3+} при этом не была обнаружена, сигнал ОСЛ отсутствовал и на других длинах волн. Отсутствие ОСЛ при оптическом стирании пиков ТСЛ можно объяснить, прежде всего, освобождением под действием света носителей заряда другого знака, а именно — электронов, а не дырок. В этом случае электроны могут рекомбинировать на ловушках с захваченными дырками безызлучательно, отчего отсутствует сигнал ОСЛ. Уничтожение же дырок в ловушках приводит к уменьшению пиков ТСЛ, для наблюдения которых эти дырки необходимы.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

асимптотой, можно предположить, что для наблюдаемого оптического стирания ТСЛ справедлива модель с транспортным барьером [5], которая теоретически предсказывает именно такую кривую. Тетраборат магния представляет собой соединение, построенное на борокислородном каркасе с довольно ковалентными, или направленными, связями. Электронную структуру тетрабората магния считали методом теории функционала плотности [9], и результаты показывают, что π -связи в борокислородном каркасе довольно хорошо локализованы по энергии. Но именно эти связи делокализованы в пространстве, и именно они отвечают за перенос носителей заряда. Поэтому при оптической стимуляции освобождения

Механизм термолюминесценции тетрабората магния с диспрозием аналогичен таковому для тетрабората магния с тулнием, а именно, до облучения ионизирующими излучениями редкая земля доминирует в состоянии $2+$, и только захват освобождаемой при нагревании дырки перезаряжает ее в $3+$, одновременно переводя в возбужденное состояние.

Исследование чувствительности детекторов ТЛД-580Н к свету показало, что воздействие светом в довольно широком диапазоне длин волн (по крайней мере, 365–470 нм) эффективно уничтожает пики ТСЛ и тем самым стирает дозовую информацию. Это означает, что такие детекторы на-

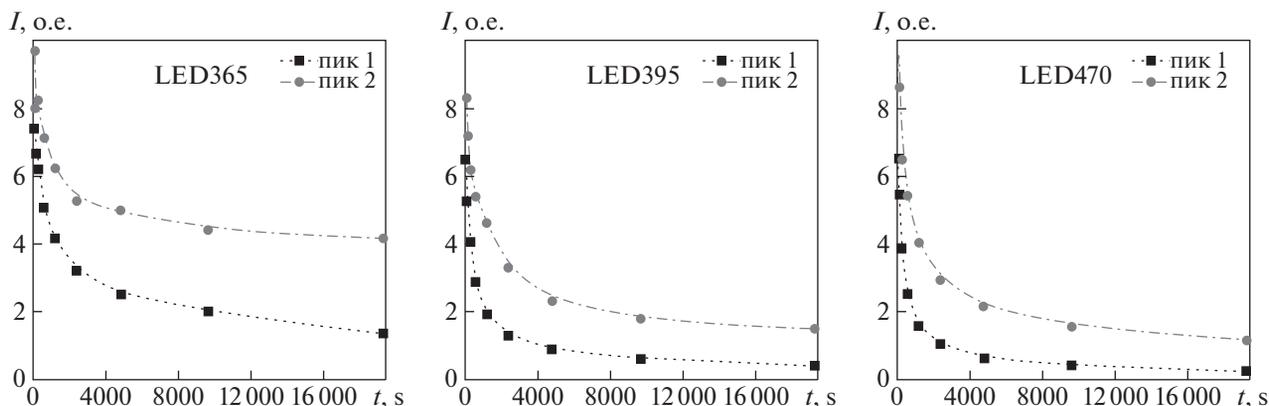


Рис. 4. Зависимость остаточной светосуммы от времени освещения светодиодами с различными длинами волн излучения для низкотемпературного (пик 1) и высокотемпературного (пик 2) пиков ТСЛ.

до использовать в составе дозиметра, корпус которого непрозрачен для света.

При эффективном оптическом стирании пиков ТСЛ у детекторов отсутствует сигнал ОСЛ. Это объясняется дырочным механизмом рабочего пика ТСЛ, который нарушается из-за освобождения светом электронов из ловушек, поскольку электроны уничтожают при этом захваченные дырки, притом рекомбинация электронов с дырками оказывается в этом случае безызлучательной. Отсутствие ОСЛ осложняет мониторинг распределения радиационного поля в реальном времени, поскольку для решения такого рода задач оптическая стимуляция считывания была бы намного удобнее.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа была поддержана в рамках проекта Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, грант № 075-11-2021-086.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Patra G.D., Singh S.G., Singh A.K., Tyagi M., Desai D.G., Tiwari B., Sen S., Gadkari S.C.* Silver doped lithium tetraborate ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$) single crystals as efficient dosimeter material with sub-micro-Gy sensitivity // *Journal of Luminescence*, 2015. Т. 157. С. 333–337. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2014.09.017>
2. *Cano A., Gonzalez P.R., Furetta C.* Further studies of some TL characteristics of MgB_4O_7 : Dy, Na phosphor // *Modern Physics Letters B*, 2008. Т. 22. № 21. С. 1997–2006. <https://doi.org/10.1142/S0217984908016674>
3. *Jaek I., Kerikmäe M., Lust A.* Optically stimulated luminescence of some thermoluminescent detectors as an indicator of absorbed radiation dose // *Radiation protection dosimetry*, 2002. Т. 100. № 1–4. С. 459–461. <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.rpd.a005914>
4. *Danilkin M., Jaek I., Kerikmäe M., Lust A., Mändar H., Pung L., Ratas A., Seeman V., Klimonsky S., Kuznetsov V.* Storage mechanism and OSL-readout possibility of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$: Mn (TLD-800) // *Radiation Measurements*, 2010. Т. 45. № 3–6. С. 562–565. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2010.01.045>
5. *Селюков А.С., Применко А.Э., Гарденина Т.А., Данилкин М.И.* Роль затрудненного транспорта носителей заряда в кинетике термо- и оптически стимулированной люминесценции // *Краткие сообщения по физике ФИАН*, 2020. Т. 47. № 11. С. 37–45. <https://doi.org/10.3103/S1068335620110093>
6. *Selvam T.P., Keshavkumar B.* Monte Carlo investigation of energy response of various detector materials in and brachytherapy dosimetry. // *Journal of Applied Clinical Medical Physics*, 2010. Т. 11. № 4. С. 70–82. <https://doi.org/10.1120/jacmp.v11i4.3282>
7. *Kumar M.V.V., Jamalaliah B.C., Gopal K.R., Reddy R.R.* Optical absorption and fluorescence studies of Dy^{3+} -doped lead telluroborate glasses // *Journal of luminescence*, 2012. Т. 132. № 1. С. 86–90. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2011.07.021>
8. *Porwal N.K., Kadam R.M., Seshagiri T.K., Natarajan V., Dhobale A.R., Page A.G.* EPR and TSL studies on MgB_4O_7 doped with Tm: role of BO_3^{2-} in TSL glow peak at 470 K // *Radiation measurements*, 2005. Т. 40. № 1. С. 69–75. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2005.04.007>
9. *Oliveira T.M., Lima A.F., Brik M.G., Souza S.O., Lalic M.V.* Electronic structure and optical properties of magnesium tetraborate: An ab initio study // *Computational Materials Science*, 2016. Т. 124. С. 1–7. <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2016.07.007>

Vestnik Natsional'nogo Issledovatel'skogo Yadernogo Universiteta "MIFI", 2022, vol. 11, no. 2, pp. 164–169

Optical Erasing of Dose Information in TLD-580N Thermoluminescent Detectors

I. A. Zakharchuk^{a,#}, A. S. Selyukov^{a,b,c}, M. I. Danilkin^{c,d}, O. V. Ivkina^e, and I. V. Mosyagina^e

^a *Bauman Moscow State Technical University, Moscow, 105005 Russia*

^b *Moscow Polytechnic University, Moscow, 107023 Russia*

^c *Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences, Moscow, 117485 Russia*

^d *Moscow Institute of Physics and Technology (National Research University), Dolgoprudny, Moscow region, 141701 Russia*

^e *Specialized Research Institute of Instrument Engineering, Moscow, 123060 Russia*

[#] *e-mail: zakharchukia@yandex.ru*

Received August 1, 2022; revised August 2, 2022; accepted August 9, 2022

Abstract—The study of thermoluminescence and photoluminescence spectra allows us to propose a thermoluminescence mechanism for MgB_4O_7 :Dy,Na, which is similar to that previously known for MgB_4O_7 :Tm. Here, the release of holes from the hole trapping center gives rise to the main working peak of thermoluminescence. The fading of dose information in MgB_4O_7 :Dy,Na thermoluminescent detectors (TLD-580N) exposed to light (365, 395, and 470 nm) is also studied. The thermoluminescence peaks diminish without any

pronounced optically stimulated luminescence. According to the proposed model, light releases electrons, which recombine with holes in hole traps, after which thermoluminescence becomes impossible.

Keywords: thermoluminescence, dosimetry, optically stimulated luminescence, magnesium tetraborate, $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$

DOI: 10.56304/S2304487X22020134

REFERENCES

1. Patra G.D., Singh S.G., Singh A.K., Tyagi M., Desai D.G., Tiwari B., Sen S., Gadkari S.C. Silver doped lithium tetraborate ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$) single crystals as efficient dosimeter material with sub-micro-Gy sensitivity. *Journal of Luminescence*, 2015, vol. 157, pp. 333–337. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2014.09.017>
2. Cano A., Gonzalez P.R., Furetta C. Further studies of some TL characteristics of $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$ phosphor. *Modern Physics Letters B*, 2008, vol. 22, no. 21, pp. 1997–2006. doi: 10.1142/S0217984908016674
3. Jaek I., Kerikmäe M., Lust A. Optically stimulated luminescence of some thermoluminescent detectors as an indicator of absorbed radiation dose. *Radiation protection dosimetry*, 2002, T. 100, no. 1–4, pp. 459–461. <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.rpd.a005914>
4. Danilkin M., Jaek I., Kerikmäe M., Lust A., Mändar H., Pung L., Ratas A., Seeman V., Klimonsky S., Kuznetsov V. Storage mechanism and OSL-readout possibility of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Mn}$ (TLD-800). *Radiation Measurements*, 2010, T. 45, no. 3–6, pp. 562–565. doi: 10.1016/j.radmeas.2010.01.045
5. Selyukov A.S., Primenko A.E., Gardenina T.A., Danilkin M.I. Thermally and Optically Stimulated Luminescence Kinetics with Impeded Carrier Transport. *Bulletin of the Lebedev Physics Institute*, 2020, vol. 47, no. 11, pp. 37–45. <https://doi.org/10.3103/S1068335620110093>
6. Selvam T.P., Keshavkumar B. Monte Carlo investigation of energy response of various detector materials in and brachytherapy dosimetry. *Journal of Applied Clinical Medical Physics*, 2010, vol. 11, no. 4, pp. 70–82. <https://doi.org/10.1120/jacmp.v11i4.3282>
7. Kumar M.V.V., Jamalaih B.C., Gopal K.R., Reddy R.R. Optical absorption and fluorescence studies of Dy^{3+} -doped lead telluroborate glasses. *Journal of luminescence*, 2012, vol. 132, no. 1, pp. 86–90. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2011.07.021>
8. Porwal N.K., Kadam R.M., Seshagiri T.K., Natarajan V., Dhobale A.R., Page A.G. EPR and TSL studies on MgB_4O_7 doped with Tm: role of BO_3^{2-} in TSL glow peak at 470 K. *Radiation measurements*, 2005, vol. 40, no. 1, pp. 69–75. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2005.04.007>
9. Oliveira T.M., Lima A.F., Brik M.G., Souza S.O., Lalic M.V. Electronic structure and optical properties of magnesium tetraborate: An ab initio study. *Computational Materials Science*, 2016, vol. 124, pp. 1–7. <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2016.07.007>