

УДК 539.1.074.535.377

Монокристаллические детекторы на основе фтористого лития

НЕПОМНЯЩИХ А. И., МИРОНЕНКО С. Н., АФОНИН Г. П., СЕЛЯВКО А. И.

Фтористый литий в качестве детекторов для термолуминесцентной дозиметрии используется уже более 30 лет. В настоящее время 70 % детекторов, применяемых в этой области [1], изготавливаются на основе фтористого лития. Известно около 30 способов и составов приготовления люминофоров на основе LiF. В большинстве случаев фтористый литий применяют в виде прессованных и поликристаллических таблеток, а также в виде изделий из тефлона (фторопласта) с диспергированным в нем порошком. Всем этим детекторам присущ общий недостаток: значительный фоновый сигнал, который определяется большой поверхностью, соприкасающейся с окружающей атмосферой.

В монокристаллических детекторах этот недостаток устраняется благодаря малой поверхности взаимодействия с атмосферой, прозрачности в широкой области спектра и, как следствие этих свойств, малым значениям фонового сигнала, а также увеличению чувствительности детектора. Однако применение таких детекторов было ограничено трудностью получения однородных по чувствительности крупных монокристаллов фтористого лития [2, 3].

В Институте геохимии им. А. П. Виноградова СО АН СССР разработаны монокристаллические детекторы (ДТГ-4) на основе LiF : Mg, Ti и способы выращивания однородных по чувствительности монокристаллов заданной конфигурации с разбросом по чувствительности, не превышающим $\pm 15\%$. Диаметр этих детекторов 5 мм, толщина 1 мм. Кроме того, могут изготавливаться детекторы диаметрами 3, 8 и 10 мм. Рассмотрим их основные характеристики.

Нижний предел детектируемой дозы. Одной из основных характеристик термолуминесцентного детектора, определяющей области его возможного применения, является нижний предел детектируемой дозы, который в свою очередь определяется совокупностью выхода термостимулированной люминесценции (ТСЛ), фонового сигнала детектора и степени соответствия спектра излучения детектора области максимальной чувствительности ФЭУ.

Выход ТСЛ различных детекторов из LiF : Mg, Ti составляет $10^9 - 10^{10}$ квант \cdot г $^{-1}$ \cdot сГр $^{-1}$, а оптимальным, по-видимому, является значение $(0,5 - 1) \cdot 10^{10}$ квант \cdot г $^{-1}$ \cdot сГр $^{-1}$. Выход ТСЛ практически не зависит от концентрации магния в пределах 0,03—0,5%. Увеличение же концентрации окиси титана приводит к значительному возрастанию низкотемпературных пиков (рис. 1). В кристаллах LiF : Mg свечение обусловлено примесны-

ми «титановыми» центрами, образующимися из-за следовой примеси титана в сырье.

При выходе ТСЛ порядка 10^{10} квант \cdot г $^{-1}$ \cdot сГр $^{-1}$ измерительные устройства на современной электронной базе, особенно при использовании метода счета фотонов, позволяют регистрировать с достаточной степенью точности дозы на уровне 10^{-3} сГр и ниже, а спектр излучения детекторов на основе LiF : Mg, Ti соответствует области максимальной чувствительности фотумножителей. Таким образом, нижний предел детектируемой дозы будет ограничен уровнем собственного фонового сигнала детектора. Для монокристаллических детекторов значение уровня собственного фонового сигнала менее 10^{-3} сГр, и поэтому они позволяют детектировать с достаточной степенью точности дозы 10^{-3} сГр и менее (рис. 2).

Множественность применения детекторов. Одна из основных эксплуатационных характеристик детектора — множественность его использования. Практически для всех известных детекторов на основе фтористого лития при их многократном применении необходимы специальные режимы дополнительной термической обработки [4, 5].

Изменение интенсивности пика ТСЛ при 200 °С определяется диффузионными процессами агрегации Mg $^{2+}$ V $_c$ -диполей [6], являющихся основным исходным компонентом для создания Mg $^{2+}$ V $_c$ V $_c$ -

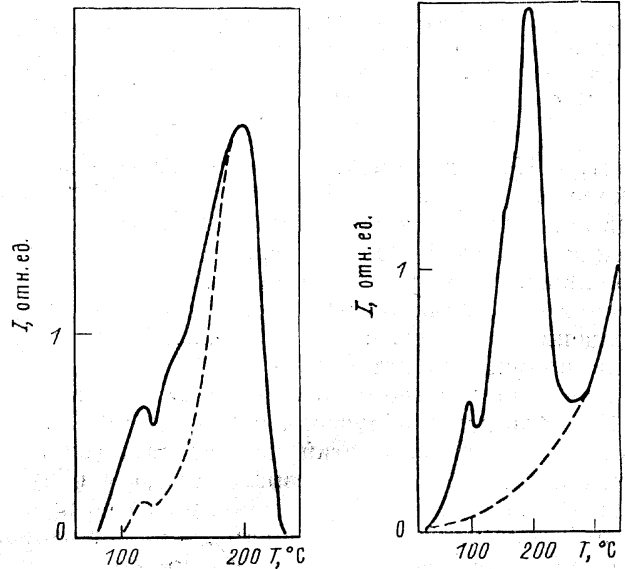
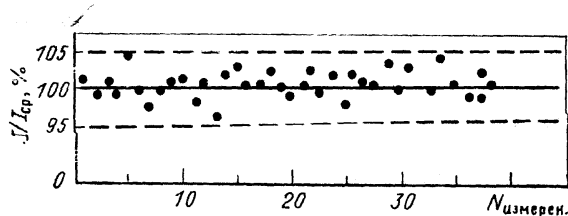
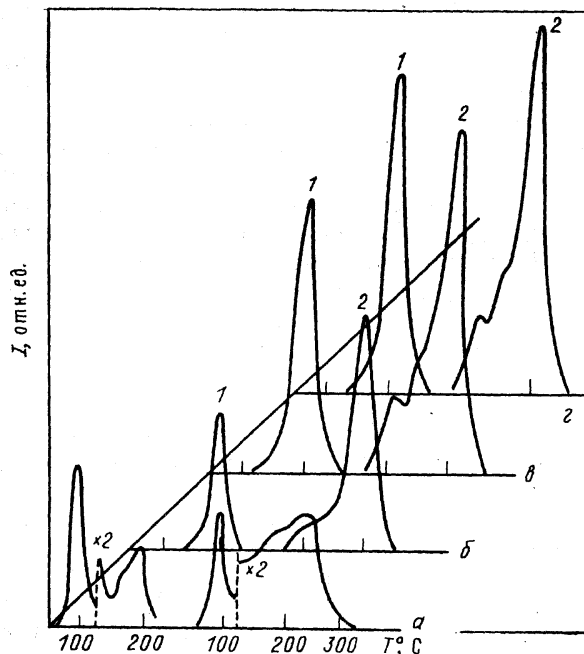


Рис. 1. Кривые ТСЛ кристаллов LiF : Mg (---), LiF : Mg, Ti (—)

Рис. 2. Кривая ТСЛ детектора ДТГ-4 при дозе излучения 10^{-5} Гр: --- фон нагревателя с детектором



Р и с. 3. Сходимость показаний детекторов при многократном применении при дозе облучения за цикл 10 сГр: ● — экспериментальные точки; — — нулевая линия; - - - - доверительный интервал



Р и с. 4. Кривые ТСЛ детекторов ДТГ-4: а — данные для LiF:Mg из работы [5]; б — после хранения необлученных детекторов LiF:Mg 11 лет; в — то же после хранения 8 лет; г — то же после хранения 3 года; 1 — «свежие» детекторы; 2 — последующее высвечивание

центров [7], ответственных за пик ТСЛ при 200 °С. Скорость диффузионной агрегации $Mg^{2+}V_c^-$ -диполей зависит от концентрации магния. При уменьшении последней скорость агрегации соответственно снижается и при некоторых значениях концентрации изменения чувствительности детектора при хранении не будет, что и наблюдается для монокристаллических детекторов ДТГ-4.

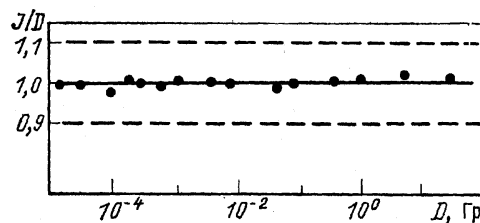
Для многократного использования детекторов ДТГ-4 при дозах облучения менее 300 сГр дополнительной термообработки не требуется (рис. 3). Сходимость результатов измерений дозы облучения на приборах ТЕЛДЕ и «Victoreen» не превышает 3 %. Многократность применения детекторов составляет не менее 500 раз без дополнительной термообработки.

В отличие от работы [8], нами не замечено изменение кривых термовысвечивания (КТВ) необлученных кристаллов после длительного хранения.

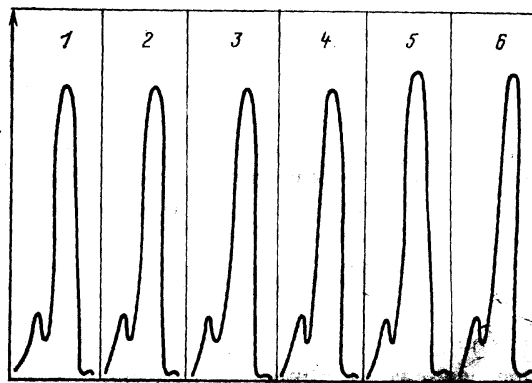
Так, хранение кристаллов LiF:Mg в течение 10 лет и кристаллов LiF:Mg, Ti в течение нескольких лет (рис. 4, кривые б, в, г) не приводит к изменению КТВ. Отличительной особенностью детекторов, хранившихся достаточно долго, является отсутствие пика 2.

Зависимость выхода ТСЛ от дозы облучения. В большинстве работ указывается, что зависимость светосуммы от дозы не является линейной функцией в областях малых (на уровнях фоновое сигнала) и больших доз облучения [9]. При дозах облучения более 300 сГр, как правило, начинается область сверхлинейной зависимости. Область линейной зависимости дозовой характеристики для больших доз облучения может быть значительно расширена сенсбилизацией люминофора. При этом увеличивается выход ТСЛ. Но, несмотря на это, сенсбилизация не позволяет расширить предел измерений в области малых доз облучения, так как сильно возрастает фоновое свечение. Поскольку у сенсбилизированного люминофора дозовая характеристика линейна при больших дозах облучения, его предпочтительно используют в клинической дозиметрии в диапазоне $10-10^4$ сГр [10].

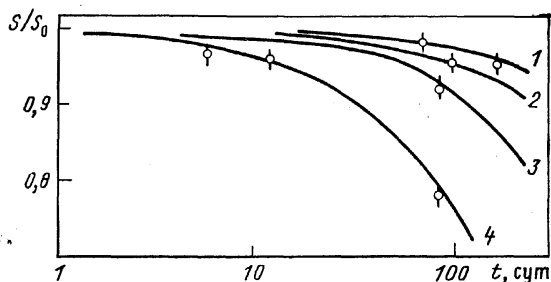
Зависимость выхода ТСЛ монокристаллических детекторов ДТГ-4 от дозы облучения приведена на рис. 5. После облучения дозами более 300 сГр детектор нагревали до 370 °С и выдерживали в те-



Р и с. 5. Зависимость показаний детекторов ДТГ-4 от дозы рентгеновского излучения: ● — экспериментальные точки; — — нулевая линия; - - - - доверительный интервал



Р и с. 6. Стабильность показаний детекторов после облучения дозами $1,8 \cdot 10^{-1}$ Гр (1), 6,0 Гр (2), $1,8 \cdot 10^{-1}$ Гр (3), 30 Гр (4), $1,8 \cdot 10^{-1}$ Гр (5), $1,8 \cdot 10^{-1}$ Гр (6) после облучения дозой $5 \cdot 10^2$ Гр



Р и с. 7. Зависимость потерь дозиметрической информации от времени хранения детектора при 120 (1), 35 (2), 40 (3) и 50 °С (4): — — расчет; ○ — эксперимент

чение 15–16 с. Как следует из рис. 5, дозовая характеристика линейна в интервале 10^{-3} – $3 \cdot 10^3$ сГр, а характеристики детектора не изменяются после воздействия больших доз облучения (до $5 \cdot 10^4$ сГр), благодаря чему возможно измерение малых доз без изменения чувствительности детектора (рис. 6).

Потери запасенной светосуммы при хранении детекторов. Сохранность запасенной детектором светосуммы (дозиметрической информации) определяется характеристиками центров захвата (энергией активации E и частотным фактором P_0), а также температурой окружающей среды.

Число заполненных ловушек n при температуре T к моменту времени t (для кинетики первого порядка) можно описать выражением

$$n = n_0 \exp [- P_0 \exp (- E/kT)],$$

где n_0 — число заполненных ловушек в начальный момент времени.

Для обеспечения длительной сохранности запасенной светосуммы необходимо, чтобы центры захвата, ответственные за основной дозиметрический пик ТСЛ, имели достаточно высокую энергию активации. Кроме того, не должно быть более мелких ловушек, или их концентрация должна быть значительно меньше концентрации основных ловушек, т. е. на кривой ТСЛ светосумма, запасаемая в низкотемпературных пиках, должна быть в процентном отношении к светосумме основного пика меньше допустимого значения потерь дозиметрической информации.

На рис. 7 представлены расчетные зависимости и экспериментальные значения потерь запасенной светосуммы детектора ДТГ-4 от времени хранения при разной температуре. Для расчета приняты значения $E = 1,25$ эВ и $P_0 = 5 \cdot 10^{11}$ с $^{-1}$. Как следует из рис. 7, потери дозиметрической информации при хранении детекторов в течение одного года при +20 и +35 °С не превышают 5 %. Для получения надежных результатов при +50 °С время хранения детекторов следует ограничить

3 мес. Ниже приведены основные дозиметрические характеристики монокристаллических детекторов на основе LiF : Mg, Ti.

Удельная чувствительность детектора к излучению, квант/(сГр·г)	Не менее $6,6 \cdot 10^9$
Вклад низкотемпературных пиков в полную светосумму, %	6
Дозовый эквивалент собственного фона, сГр	$1 \cdot 10^{-3}$
Сходимость чувствительности, %	± 3
Диапазон измерения поглощенной дозы, сГр	$1 \cdot 10^{-3}$ – $5 \cdot 10^3$
Изменение чувствительности детектора в диапазоне поглощенной дозы $5 \cdot 10^{-3}$ – $5 \cdot 10^3$ сГр, %	± 15
Многочисленность использования детекторов	500
Потери запасенной светосуммы при хранении в течение года, %:	
при 20 °С	Не более 5
при 40 °С	Не более 15

Детектор сохраняет свои характеристики в пределах $\pm 15\%$ после облучения дозой $5 \cdot 10^4$ сГр

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Соколов А. Д. Состояние и проблемы применения термолуминофоров в индивидуальных дозиметрах. — В кн.: Тезисы докл. на Всесоюз. совещ. «Синтез, свойства, исследования и технология люминофоров для отображения информации». Ставрополь, 1983, с. 61.
- Бочвар И. А., Гимадова Т. И., Кеирим-Маркус И. Б. и др. Метод дозиметрии ИКС. М.: Атомиздат, 1977. 224 с.
- Шварц К. К., Грант З. А., Межс Т. К., Грубе М. М. Термолуминесцентная дозиметрия. Рига, Зинатне, 1968, с. 183.
- Грубе М. М., Грант З. А. Влияние термической обработки на термолуминесценцию фтористого лития. — Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук, 1968, с. 40–46.
- Cameron J., Sunfaralingam N., Cenney G. Thermoluminescent dosimetry. Madison, Univ. Wisconsin, 1968, 223 p.
- Непомнящих А. И., Раджабов Е. А. О природе центров захвата в кристаллах LiF:Mg. Деп. статья, № 1316–79. М.: ВНИИТ, 1979. 7 с.
- Непомнящих А. И., Раджабов Е. А. Магниево-электронные центры окраски в кристаллах LiF:Mg. — Оптика и спектроскопия, 1980, т. 48, N 2, с. 273.
- Парфианович И. А., Алексеева Е. П., Соцердотова Г. В. Влияние «старения» фторида лития на его дозиметрические свойства. — В кн.: Материалы III Всесоюз. симп. по люминесцентным приемникам и преобразователям рентгеновского излучения. Ставрополь, 1980, с. 106.
- Jain V. Effects of annealing on thermoluminescence of LiF (TLD). — Phys. Stat. Sol. (A), 1976, v. 38, N 1, p. K65–K68.
- Кронгауз В. Г., Шавер И. Х. Люминофоры для термолуминесцентной дозиметрии. М.: НИИТЭХИМ; 1978, с. 35.

Поступила в Редакцию 01.06.84
В окончательной редакции 11.09.84

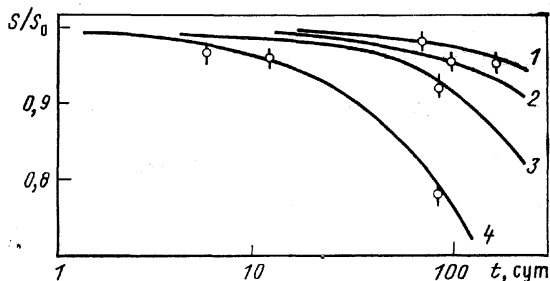


Рис. 7. Зависимость потерь дозиметрической информации от времени хранения детектора при 120 (1), 35 (2), 40 (3) и 50 °С (4): — — расчет; ○ — эксперимент

чение 15—16 с. Как следует из рис. 5, дозовая характеристика линейна в интервале 10^{-3} — $3 \cdot 10^3$ сГр, а характеристики детектора не изменяются после воздействия больших доз облучения (до $5 \cdot 10^4$ сГр), благодаря чему возможно измерение малых доз без изменения чувствительности детектора (рис. 6).

Потери запасенной светосуммы при хранении детекторов. Сохранность запасенной детектором светосуммы (дозиметрической информации) определяется характеристиками центров захвата (энергией активации E и частотным фактором P_0), а также температурой окружающей среды.

Число заполненных ловушек n при температуре T к моменту времени t (для кинетики первого порядка) можно описать выражением

$$n = n_0 \exp[-P_0 \exp(-E/kT)],$$

где n_0 — число заполненных ловушек в начальный момент времени.

Для обеспечения длительной сохранности запасенной светосуммы необходимо, чтобы центры захвата, ответственные за основной дозиметрический пик ТСЛ, имели достаточно высокую энергию активации. Кроме того, не должно быть более мелких ловушек, или их концентрация должна быть значительно меньше концентрации основных ловушек, т. е. на кривой ТСЛ светосумма, запасаемая в низкотемпературных пиках, должна быть в процентном отношении к светосумме основного пика меньше допустимого значения потерь дозиметрической информации.

На рис. 7 представлены расчетные зависимости и экспериментальные значения потерь запасенной светосуммы детектора ДТГ-4 от времени хранения при разной температуре. Для расчета приняты значения $E = 1,25$ эВ и $P_0 = 5 \cdot 10^4$ с $^{-1}$. Как следует из рис. 7, потери дозиметрической информации при хранении детекторов в течение одного года при +20 и +35 °С не превышают 5 %. Для получения надежных результатов при +50 °С время хранения детекторов следует ограничить

3 мес. Ниже приведены основные дозиметрические характеристики монокристаллических детекторов на основе LiF : Mg, Ti.

Удельная чувствительность детектора к излучению, квант/(сГр·г)	Не менее $6,6 \cdot 10^9$
Вклад низкотемпературных пиков в полную светосумму, %	6
Дозовый эквивалент собственного фона, сГр	$1 \cdot 10^{-3}$
Сходимость чувствительности, %	± 3
Диапазон измерения поглощенной дозы, сГр	$1 \cdot 10^{-3}$ — $5 \cdot 10^3$
Изменение чувствительности детектора в диапазоне поглощенной дозы $5 \cdot 10^{-3}$ — $5 \cdot 10^3$ сГр, %	± 15
Множественность использования детекторов	500
Потери запасенной светосуммы при хранении в течение года, %:	
при 20 °С	Не более 5
при 40 °С	Не более 15

Детектор сохраняет свои характеристики в пределах $\pm 15\%$ после облучения дозой $5 \cdot 10^4$ сГр

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Соколов А. Д. Состояние и проблемы применения термолюминофоров в индивидуальных дозиметрах. — В кн.: Тезисы докл. на Всесоюз. совещ. «Синтез, свойства, исследования и технология люминофоров для отображения информации». Ставрополь, 1983, с. 61.
2. Бочвар И. А., Гимадова Т. И., Кеирим-Маркус И. Б. и др. Метод дозиметрии ИРС. М.: Атомиздат, 1977. 224 с.
3. Шварц К. К., Грант З. А., Межс Т. К., Грубе М. М. Термолюминесцентная дозиметрия. Рига, Зинатне, 1968, с. 183.
4. Грубе М. М., Грант З. А. Влияние термической обработки на термолюминесценцию фтористого лития. — Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук, 1968, с. 40—46.
5. Cameron J., Sutaralingam N., Cenny G. Thermoluminescent dosimetry. Madison, Univ. Wisconsin, 1968, 223 p.
6. Непомнящих А. И., Раджабов Е. А. О природе центров захвата в кристаллах LiF:Mg. Деп. статья, № 1316—79. М.: ВИНТИ, 1979. 7 с.
7. Непомнящих А. И., Раджабов Е. А. Магниево-электронные центры окраски в кристаллах LiF:Mg. — Оптика и спектроскопия, 1980, т. 48, № 2, с. 273.
8. Парфианович И. А., Алексеева Е. П., Сопердотова Г. В. Влияние «старения» фторида лития на его дозиметрические свойства. — В кн.: Материалы III Всесоюз. симп. по люминесцентным приемникам и преобразователям рентгеновского излучения. Ставрополь, 1980, с. 106.
9. Jain V. Effects of annealing on thermoluminescence of LiF (TLD). — Phys. Stat. Sol. (A), 1976, v. 38, N 1, p. K65—K68.
10. Кронгауз В. Г., Шавер И. Х. Люминофоры для термолюминесцентной дозиметрии. М.: НИИТЭХИМ; 1978, с. 35.

Поступила в Редакцию 01.06.84
В окончательной редакции 11.09.84