



ЛЮМИНЕСЦЕНТНЫЕ ПРИЕМНИКИ И ПРЕОБРАЗОВАТЕЛИ ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Материалы симпозиума

1987

ТАРТУСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

**ЛЮМИНЕСЦЕНТНЫЕ ПРИЕМНИКИ
И ПРЕОБРАЗОВАТЕЛИ
ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ**

Материалы симпозиума

ТАРТУ 1987

Редколлегия: К.-С.К. Ребане, У.Х. Нымм, А.К. Айдля
Ответственный редактор И.В. Яэк

Arh.
INSTITUTUM
Tartu
9428

Содержание

М.А. Зланго. Элементарные процессы при возбуждении люминесценции твердых тел мягким рентгеновским излучением	5
В.И. Готлиб, В.Л. Гребенщиков, П. Заре, Л.Н. Канторович, Е.А. Немиро. Термолюминесцентная дозиметрия β -излучения	20
М.-Л.Ю. Аллсалу, М.П. Керимязе, Л.А. Пунг, Ф.А. Савихин, В.О. Семан. Условия формирования шпуров комптон-электронов в термолюминесцентных детекторах	29
И.Х. Шавер, В.Ю. Егоров, В.Д. Рожков. Исследование термолуминофоров с изменяющимся от ЛПЭ соотношением между пиками	37
Г.И. Хютт, А.Н. Молодьков. Прогресс в области применения термолюминесценции природных минералов для определения возраста геологических и археологических объектов	44
Ф.И. Косинцев, В.А. Гаркуша, Ю.И. Кузьмин. Исследование и разработка термолуминофоров для термолюминесцентных детекторов	56
В.И. Коваленко, О.В. Лебедев, И.Х. Шавер. Влияние различных факторов на точность измерения дозы термолюминесцентными дозиметрами с детекторами из фтористого лития	68
Л.Л. Синников, А.И. Непомнящих, С.Н. Мироненко, Ю.Н. Тарасенко, И.И. Соловьев. Средство измерений повышенной точности на основе монокристаллов фтористого лития	75
Ю.С. Скробут, А.С. Корчагин, М.-Л.Ю. Аллсалу, Э.Ю. Педак, И.Р. Рийв, А.А. Ратас, А.Л. Луст, М.А. Муст. Влияние условий использования ТЛД $CaF_2 - Mn$ на его характеристики	85

М.-Л.Ю. Аллсалу, Л.М. Грехова, М.П. Керикмяэ, М.Т. Орав, Э.Х. Пярноя, А.А. Ратас. О термодоминесцентных свойствах детекторов на основе $CaSO_4 \cdot 2y$, изготовленных по новой методике	90
В.И. Фоминых, С.А. Федина. Сличение термодоминесцентных дозиметрических установок	96
И.Г. Капленов, Л.А. Бендерский, В.А. Гаркуша. Исследования, разработка и производство эффективных люминофоров для рентгеновских экранов	104
Ю.А. Москалев, А.В. Дмитриева. Исследование радиационных характеристик термодоминесцентных преобразователей рентгеновского излучения (ТПИ) ...	111
А.М. Гурвич, Р.В. Катомина, Н.И. Леонова, М.Г. Мягкова, М.И. Томбак. Важнейшие свойства и области применения вольфраматных и редкоземельных усиливающих экранов	119
В.И. Мухин, Е.П. Тутов, О.П. Федосеева, А.М. Гурвич, М.А. Ильина, Р.В. Катомина. Свойства поликристаллических детекторов при регистрации излучения в рентгеновских вычислительных томографах ..	132
В.Д. Рыжиков, О.С. Шапиро, С.М. Игнатов, В.И. Силин, Ф.Е. Гуляев. Сцинтилляторы для компьютерной томографии на основе перспективных материалов ..	140
Л.Л. Нагорная, А.Е. Овечкин, С.М. Игнатов, О.С. Шапиро. Исследование кинетики послесвечения и спектральных характеристик сцинтилляционных материалов для рентгеновской томографии	149
Л.П. Смольская, И.А. Парфианович, Т.А. Колесникова, Ю.М. Карпов, Н.Г. Васильев. Центры захвата и механизмы термостимулированной люминесценции экранов CaF_2	157
В.И. Арбузов, М.Н. Толстой, М.А. Элертс. Абсолютные характеристики центров окраски в стекле $Na_2O \cdot 3SiO_2$	165

ЭЛЕМЕНТАРНЫЕ ПРОЦЕССЫ ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ТВЕРДЫХ ТЕЛ МЯГКИМ РЕНТГЕНОВСКИМ ИЗЛУЧЕНИЕМ

М.А. Эланго

Люминесценция твердых тел при облучении рентгеновским излучением рассматривается как последовательность нескольких элементарных процессов: 1) фотоэлектрическое поглощение, 2) распад рентгеновского возбуждения, 3) неупругое электрон-электронное рассеяние, 4) электрон-фононное рассеяние, 5) локализация и рекомбинация электронных возбуждений, 6) излучательный распад электронных возбуждений. Приводятся краткое квантово-механическое описание эффективности этих процессов и соответствующие экспериментальные данные для ионных кристаллов.

Введение

Люминесценция твердых тел при облучении ионизирующим, в частности, рентгеновским излучением является результатом сложной цепи физических процессов. Для количественного рассмотрения эту цепь необходимо разложить на элементарные составляющие. С точки зрения микроскопической теории элементарным является процесс, подчиняющийся рассмотрению в рамках теории квантовых переходов.

В приближении теории возмущений квантовой механики вероятность такого процесса W описывается золотым правилом Ферми

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H | 0 \rangle|^2 \rho(E_f), \quad (1)$$

где $\langle f |$ и $| 0 \rangle$ - волновые функции конечного и начального состояния системы, H - гамильтониан возмущения, $\rho(E_f)$ - плотность конечных состояний системы, E_f - энергия конечного состояния, $\langle f | H | 0 \rangle = M$ матричный элемент перехода (см.,

например, [I]).

Часто оказывается полезным характеризовать эффективность процесса его эффективным сечением σ , определяемым как

$$\sigma = WS^{-1}, \quad (2)$$

где S - поток падающих (возмущающих) агентов, и средним свободным пробегом этих агентов l , определяемым как

$$l = (\sigma N)^{-1}, \quad (3)$$

где N - концентрация возмущаемых частиц.

При таком понимании рассматриваемую цепь можно разложить на следующие элементарные процессы:

- А. Фотоэлектрическое поглощение.
- Б. Распад рентгеновского возбуждения.
- В. Неупругое рассеяние быстрых электронов на электронах вещества.
- Г. Рассеяние электронных возбуждений на фононах.
- Д. Локализация и рекомбинация электронных возбуждений.
- Е. Излучательный распад электронных возбуждений.

Оставаясь в рамках одночастичных приближений, рассмотрим более детально перечисленные элементарные процессы.

Фотоэлектрическое поглощение

Этому процессу соответствует переход одного из связанных электронов вещества ($\langle 0 |$) в свободном состоянии ($\langle f |$) под возмущающим действием электромагнитной волны, которая при этом перестает существовать, причем в линейном приближении

$$H_{pe} = \frac{e}{mc} \vec{A} \vec{p}, \quad (4)$$

где \vec{A} - векторный потенциал возмущающей волны, \vec{p} - обобщенный импульс (см., например, [I]).

Применив дипольное приближение, т.е. предположив, что длина волны излучения намного превышает средний радиус пог-

ложающей электронной оболочки, из (1) и (2) с учетом (4) для дипольно-разрешенного перехода между двумя состояниями полутим

$$\sigma_{pe} = \frac{4}{3} \pi^2 \alpha^2 \nu_{p0}^2 \approx \frac{4}{3} \pi^2 \alpha^2 a_0^2 \approx 10^{-18} \text{ см}^2, \quad (5)$$

где ν_{p0} - матричный элемент радиус-вектора перехода, $a_0 = \hbar^2 m^{-1} e^{-2} \approx 0,53 \text{ \AA}$ - боровский радиус, $\alpha = e^2 \hbar^{-1} c^{-1} \approx 137^{-1}$ - постоянная тонкой структуры, характеризующая силу взаимодействия электромагнитного излучения с электрическим зарядом. Последние равенства в (5) имеют место для атома водорода.

Таким образом, ввиду особенности возмущающего взаимодействия падающий на атом фотон "видит" его сечение уменьшенной на $137:4 \quad 35$ раз по сравнению с геометрическим сечением.

При увеличении энергии фотонов $\hbar\omega$ над пороговой энергией ионизации J энергия свободного электрона $E_f = \hbar\omega - J$ растет, его длина волны $\lambda_f = 2\pi\hbar(\lambda_m E_f)^{1/2}$ уменьшается, его волновая функция совершает в области локализации атомного электрона все больше периодов колебаний и ν_{p0} быстро уменьшается. Если $\ll 0$ соответствует, например, S -электрону, то при $\hbar\omega \gg J$ $\nu_{p0} \sim (\hbar\omega)^{-4}$. Ввиду того, что плотность состояний свободных электронов

$$g_e = \frac{V m^{3/2} E_f^{1/2}}{2^{1/2} \pi^2 \hbar^3} \quad (6)$$

(V - объем системы, m - масса электрона) растет с E_f как $E_f^{1/2}$, то σ уменьшается с ростом $\hbar\omega$ как $(\hbar\omega)^{-7/2}$. В координатах $\ln\sigma - \ln(\hbar\omega)$ эффективность ионизации K -оболочки свободных атомов далеко от K -края поглощения представляется прямой с наклоном $-7/2$ (рис. 1).

Если ионизуемый атом находится в твердом теле, то фотоэлектрон не может свободно покидать область этого атома, он частично отражается назад. Между выходящей и отраженной волнами возникает интерференция, и на спектр поглощения фотона налагается квазипериодическая структура. Эта структура содержит информацию о межатомных расстояниях в веществе. Та-

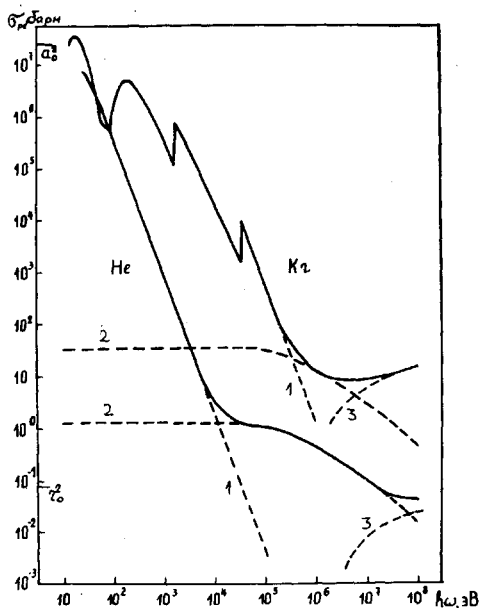


Рис. 1. Эффективное сечение взаимодействия фотонов с атомами He и Kr в зависимости от энергии фотонов: 1 - фотоэлектрическое поглощение, 2 - комптоновское рассеяние, 3 - образование электрон-позитронных пар (по данным [2]).

Fig. 1. Effective cross-section of the interaction of photons with He and Kr atoms as a function of the photon energy: 1 - photoelectric absorption, 2 - Compton scattering, 3 - electron-positron pair formation (after [2]).

ким образом, на основе анализа тонкой структуры рентгеновских спектров поглощения может быть получена информация о геометрической структуре вещества. Соответствующие методы структурного анализа в настоящее время широко применяются в основном с использованием синхротронного излучения и полу-

чили название методов EXAFS (сокращение от английского названия Extended X-ray Absorption Fine Structure) XANES (X-ray Absorption Near Edge Structure).

Что касается формы спектров в области краев поглощения, то она трудно поддается аналитическому рассмотрению. Большую роль в ее определении, особенно в случае внешних электронных оболочек, играют многоэлектронные эффекты, которые в настоящее время составляют один из актуальных разделов атомной физики [4].

При очень больших энергиях фотона фактор $(\hbar\omega)^{-7/2}$ приводит к значительному уменьшению σ_{pe} , так что на первый план выступают комptonовское рассеяние и образование электронно-позитронных пар, сечение которых характеризуется классическим радиусом электрона $r_0 = e^2 m^{-1} c^{-2} = \alpha^2 a_0 \approx 2,82 \cdot 10^{-13}$ (см. рис. 1).

Распад рентгеновского возбуждения

Атом с ионизованной внутренней электронной оболочкой находится в высоком возбужденном состоянии и переходит в низкоэнергетические состояния посредством излучательных (рентгеновское излучение) или безизлучательных (оже-распад) процессов.

В случае излучательного распада <01 и $<f1$ принимаются соответственно как волновые функции электрона в одной из внешних и в ионизационной внутренней оболочках [1]. Так как излучение - процесс, противоположный поглощению, H также описывается выражением (4). Поскольку в конечном состоянии появляется фотон, плотность состояния которого

$$g_p = \frac{V (\hbar\omega)^2}{2\pi^2 (c\hbar)^3}, \quad (7)$$

для вероятности дипольно-разрешенного излучательного процесса получим

$$W_n = \frac{4}{3} \frac{(\hbar\omega)^3}{\hbar^3 c^2} \alpha r_0^2 = \frac{2^4 \alpha^3}{6 c_0}, \quad (8)$$

где z - заряд ядра атома, $\tau_0 = \hbar^3 m^{-1} e^{-4} \approx 2,42 \cdot 10^{-7}$ с - атомное время.

В безызлучательном переходе принимают участие два электрона, $\langle 0 |$ соответствуют два атомных состояния. $\langle f |$ - одно атомное и одно свободное состояние. Возмущением служит электростатическое взаимодействие между переходящими электронами, так что

$$H_{ee} = \frac{e^2}{r_{12}} \approx \frac{e^2}{a_0} = E_a, \quad (9)$$

где r_{12} - расстояние между рассматриваемыми электронами в начальном состоянии, E_a - атомная единица энергии ($\approx 27,1$ эВ). Типичная скорость процесса составляет 10^{15} с⁻¹ и слабо зависит от энергии перехода [4].

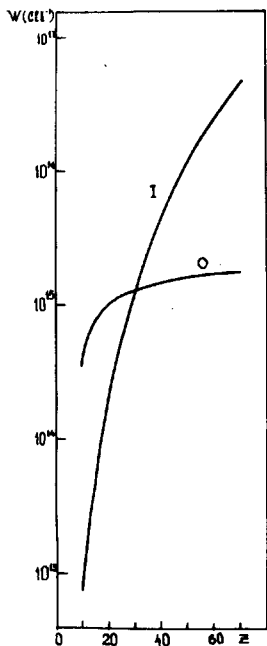


Рис. 2. Вероятности излучательного (I) и безызлучательного распада дырки в К-оболочке в зависимости от порядкового номера атома (по данным [5]).

Fig. 2. Probabilities of radiative (I) and nonradiative (O) decay of K shell hole as a function of the atomic number (after [5]).

При сравнении эффективностей излучательного и безизлучательного распада необходимо иметь в виду, что $M_{pe} / M_{ee}^2 \approx \alpha$. Поэтому при небольших энергиях переходов эффективность процесса Оже значительно превышает эффективность излучения. При больших энергиях переходов соотношение этих эффективностей обратное - с ростом энергии \mathcal{G}_e растет как $E_e^{1/2}$ а \mathcal{G}_p - как $(h\omega)^2$. Это хорошо иллюстрируется экспериментальными данными по скорости распада дырок в К-оболочках атомов (рис. 2).

Неупругое рассеяние электронов

В этом процессе, часто называемом (e, 2e)-процессом, в простейшем (борновском) приближении $\langle \sigma \rangle$ соответствует атомный электрон и взаимодействующий с ним быстрый электрон, а $\langle \sigma \rangle$ - два свободных электрона. Переход происходит под действием кулоновского взаимодействия между электронами, как и в случае процесса Оже,

$$N_{ee} = \frac{e^2}{n_{12}} \quad (I0)$$

Для эффективного сечения процесса в случае атома водорода получим выражение

$$\sigma_{ee} \approx \alpha^2 \frac{E_a}{E_0} \frac{E_a}{\Delta E} \ln \frac{E_0}{\Delta E}, \quad (II)$$

где ΔE - потерянная быстрым электроном энергия [6]. Ввиду отсутствия в этом выражении множителя α , это сечение при энергиях падающего электрона $E_0 \approx E_a$ близко к геометрическому сечению атома ($\approx 10^{-16} \text{ см}^2$). Зависимость свободного пробела (3) электронов относительно этого процесса λ_{ee} от E_0 демонстрируется на рис. 3. В случае твердых тел при $E_0 \approx 100 \text{ эВ}$ она практически не зависит от конкретного вещества.

После совершения цепей распадов ионизированных атомов и неупругих электрон-электронных рассеяний за время порядка 10^{-14} с в твердых телах имеется большое количество низкоэнергетических электронных возбуждений - электронов проводимости, валентных дырок, экситонов. Их количество может быть оценено как

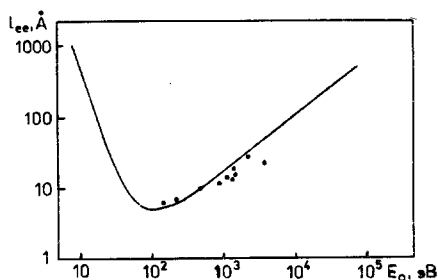


Рис. 3. Средняя длина свободного пробега электрона относительно неупругого рассеяния на связанных электронах в Al_2O_3 в зависимости от энергии электрона; точки - экспериментальные данные [7].

Fig. 3. Mean free path of an electron for inelastic electron-electron scattering in Al_2O_3 as a function of the electron energy (dots show the experimental values) [7].

$$N_e \approx \frac{E_n}{\mathcal{E}}, \quad (12)$$

где E_n - поглощенная в веществе энергия излучения, \mathcal{E} - средняя энергия создания одного низкоэнергетического возбуждения. В таком приближении \mathcal{E} является константой данного вещества. Его значение зависит от деталей зонной структуры вещества (в частности, от соотношения ширин валентной и запрещенной зон) и составляет $(1,5-2,0) E_g$ для широкощелевых диэлектриков и $(3-4) E_g$ для типичных полупроводников [8].

Эксперименты по рентгеноэлектронной эмиссии [9] и компьютерные эксперименты [10] показали, что при $\hbar\omega = 50-250$ эВ в случае кристаллов $NaCl$ $\mathcal{E} \approx 15-16$ эВ, причем возникающие электроны проводимости находятся на среднем расстоянии около 50 \AA от точек поглощения первичных фотонов и имеют среднюю кинетическую энергию около $4,5$ эВ.

Электрон-фононное рассеяние

При движении в кристалле электронные возбуждения могут рассеиваться на фононах. Такие процессы описываются как поглощение или излучение фононов, причем $\langle 0 |$ и $\langle 1 |$ соответствуют блоховские волны с различными квазиимпульсами, а гамильтониан возмущения $H_{eV} = D + e\varphi$, учитывает рождаемые колебаниями решетки микроскопические и макроскопические поля [II]. Взаимодействие первых с электронными возбуждениями описывается деформационным потенциалом D , измеряющим смещение экстремума соответствующей зоны при деформации решетки, а взаимодействие вторых - эффективным электростатическим потенциалом φ , созданным колебаниями. Первое взаимодействие преобладает в случае акустических, второе - в случае оптических фононов. Последнее может быть рассмотрено аналогично неупругому электрон-электронному рассеянию, описываемому выражениями (I0) и (II), если ввести эффективный заряд e^* и полярный радиус α_p

$$e^* = \omega_{Lo} \left(\frac{m^* V_0}{2 \epsilon^*} \right)^{1/2}, \quad \alpha_p = \left(\frac{k}{2 m^* \omega_{Lo}} \right)^{1/2} \approx \frac{a_0}{(2 \epsilon_0 \omega_{Lo})^{1/2}},$$

так, что $\varphi = e^* / \alpha_p$. Здесь ω_{Lo} - частота оптического фонона, m^* - эффективная масса носителя, V_0 - объем элементарной ячейки, $\epsilon^* = \epsilon_0^{-1} - \epsilon_\infty^{-1}$, ϵ_0 и ϵ_∞ - низкочастотная и высокочастотная диэлектрические проницаемости.

Электрон-фононное рассеяние характеризуется временем релаксации, т.е. средним временем между последующими актами рассеяния $10^{-14} - 10^{-15}$ с (рис. 4), чему соответствует свободный пробег $l_{eV} \approx 10 - 100 \text{ \AA}$. При небольшой энергии носителей поляризационное взаимодействие около $(M/m)^{1/2}$ раз (M - масса атомов решетки) сильнее деформационного, однако, с ее ростом относительная роль второго взаимодействия растет ввиду близкого действующего характера соответствующего потенциала.

Электрон-фононное взаимодействие приводит к термализации

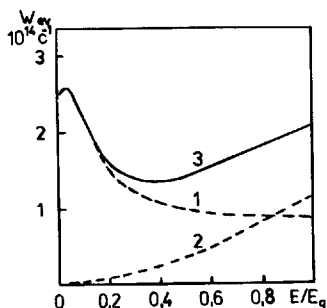


Рис. 4. Вероятность рассеяния электрона на фононах (1 - на оптических фононах, 2 - на акустических фононах, 3 - суммарная вероятность) в кристаллах $NaCl$ в зависимости от энергии электрона (E_g - ширина запрещенной зоны) [12].

Fig. 4. Probability of electron-phonon scattering (1 - optical phonons, 2 - acoustical phonons, 3 - total probability) in $NaCl$ crystals as a function of the electron energy (E_g is the forbidden bandgap) [12].

носителей за $n = (2N_0 + 1) E_0 (\hbar\omega_{L0})^{-1}$ актов рассеяния, где N_0 - число заполнения фононов. Процесс термализации в хорошем приближении можно рассмотреть как диффузию с характерным расстоянием - длиной диффузии $L = (D_e \tau)^{1/2} = 3^{-1/2} n l v$ (D - эффективный коэффициент диффузии, τ - среднее время термализации). Измерения спектров возбуждения люминесценции ионных кристаллов мягким рентгеновским излучением, в которых через приповерхностное тушение отражается диффузия носителей на поверхность кристаллов, дали для L оценку 500-1000 Å в случае щелочногалогенидных кристаллов и 1500-3000 Å в случае оксидов [13]. Эффективность такого тушения оказалась в хорошем приближении пропорциональной множителю $1 + \mu L$, диктуемой диффузионным приближением (μ - коэффициент поглощения излучения).

Локализация и рекомбинация носителей

Взаимодействие электронных возбуждений с колебаниями и дефектами решетки приведет к их локализации за время $\bar{\tau} = (\sum \bar{\tau}_i^{-1})^{-1}$, где $\bar{\tau}_i$ - время i -ого процесса локализации. Аналитическое квантово-механическое рассмотрение таких процессов относится к сложнейшим задачам теории твердого тела (в частности, ввиду участия большого количества фононов и частого отказа адиабатического приближения) и пока что не привело к обозримым выражениям, готовым к применению для надежной оценки эффективности процессов (см., например, [14]). Во многих ионных кристаллах возможна автолокализация дырок и экситонов, которая происходит за время $\bar{\tau}_\alpha \approx 10^{-11} - 10^{-12}$ с.

Во всех неметаллических твердых телах возможен захват носителей на дефектах решетки. В приближении кинетического уравнения Больцмана время этого процесса $\bar{\tau}_z = (V \sigma_z N_z)^{-1}$ (V - скорость носителя, N_z - концентрация центров захвата) определяется сечением захвата

$$\sigma_z = \frac{\pi r_z^2}{1 + \frac{3}{4} \frac{r_z}{\ell_{cv}}},$$

где r_z - радиус захвата [19]. В случае электрически нейтральных центров r_z имеет порядок постоянной решетки, $\ell_{cv} \gg r_z$ и $\sigma_z \approx \pi r_z^2$ имеет порядок $10^{-14} - 10^{-15}$ см². При облучении мягкими рентгеновскими лучами такое значение (точнее, $1,5 \cdot 10^{-15}$ см²) найдено для захвата дырок Ag^+ -центрами в кристаллах $NaCl \cdot Ag$ [16]. Если центр захвата имеет относительно носителя притягивающий электрический заряд, то сечение захвата определяется расстоянием $R_z \approx e^2 (\epsilon_0 kT)^{-1}$ (k - постоянная Больцмана, T - температура), на которой уравниваются кинетическая (тепловая) и потенциальная энергия носителя и составляет величину, в $R_z \ell_{cv} r_z^{-2} \approx 10^2 - 10^3$ раз большую, чем сечение захвата на нейтральном центре [17].

Процесс рекомбинации обычно сводится к процессу захвата носителя локализованным носителем противоположного знака и

описывается в аналогичных терминах с учетом, конечно, эффективных зарядов центра и носителя.

Излучательный распад электронных возбуждений

Конечным процессом рассматриваемого звена является излучательный распад электронных возбуждений. На уровне выражения (I) задача аналогична излучательному распаду рентгеновских возбуждений. Существенное ее усложнение вытекает, однако, из обстоятельства, что $\langle \sigma |$ и $\langle f |$ в данном случае не описываются квазиатомными волновыми функциями, а образуются под сильным влиянием кристаллического потенциала. В результате W_1 может колебаться в широких пределах от 0 до 10^8 с^{-1} . Ситуация усложняется возможностью безызлучательного распада возбужденного центра, результатом которого является либо большое количество фононов (этот случай во многом аналогичен захвату носителя локальным центром), либо большие смещения малого числа атомов кристалла, т.е. дефекты решетки (см., например, [18]).

О последовательности элементарных процессов

Рассмотренная выше совокупность элементарных процессов разыгрывается практически во всех случаях, когда облучение вещества ионизирующими излучениями приводит к его люминесценции. Разными могут быть только последовательность и относительная роль различных процессов.

Приведенная здесь последовательность характерна для облучения ионных кристаллов мягкими рентгеновскими лучами. Существенной особенностью этого случая является возможность более или менее четкого пространственного и временного разделения процессов А, Б, В и Г. Действительно, как было показано выше, процессы Б и В занимают время 10^{-14} – 10^{-15} с и объем радиуса 50–100 Å, в то время как соответствующие характеристики процесса Г составляют 10^{-11} – 10^{-12} с и 1000 Å. При увеличении $h\nu$ выше 1000 эВ возможность такого разделения ввиду увеличения l_{ee} и числа процессов типа Б и В

исчезнет. При облучении электронами и другими заряженными частицами первым происходит процесс В, а в дальнейшем процессы А, Б и В (а при больших E_0 и Γ) перепутываются. При больших интенсивностях и дозах облучения имеет место пространственно-временное перемешивание каскадов элементарных процессов, инициируемых разными первичными частицами.

Литература

1. Давыдов А.С. Квантовая механика. - М.: Физматгиз, 1963.
2. Marr G.V., West J.B. Absolute photoionization cross section tables for Xe, Ne, Ar and Kr in the VUV spectral regions. - Atomic Data Nucl. Data Tables, 1976, vol. 18, N 2, p. 297-310.
3. Amusia M.Ya. Many-electron effects in photoionization of intermediate and inner shells. - In: X-Ray and Inner-Shell Processes in Atoms, Molecules and Solids. Leipzig: Karl-Marx Universität, 1984, p. 33-50.
4. Парилис Э.С. Эффект Оже.-Ташкент: Фан, 1969.
5. Bambynek W., Crasemann B., Fink R.W. et al. X-ray fluorescence yields, Auger and Coster-Kronig transition probabilities. - Rev. Mod. Phys., 1972, vol. 44, N 4, p. 716-813.
6. Мотт Н., Мессиа Г. Теория атомных столкновений. - М.: Мир, 1969.
7. Ritchie R.H., Tung C.J., Anderson V.E., Ashley J.C. Electron slowing-down spectra in solids. - Radiat. Res., 1975, vol. 64, p. 181-204.
8. Alig R.C., Bloom S., Struck C.W. Scattering by ionization and phonon emission in semiconductors. - Phys. Rev., 1980, vol. B22, N 12, p. 5565-5582.
9. Elango M., Kikas A., Nömmiste E., Pruulmann J., Saar, A. The quantum yield spectra of electron emission of solids in XUV region; alkali chlorides at 100 to 250 eV. - Phys. status solidi (b), 1982, vol. 114, N 2, p. 487-493.

10. Аусмезс А.Х., Кижас А.Х., Лооритс В.А., Пруулман Я.Я., Эланго М.А. Создание и термализация носителей заряда в кристаллах при облучении ультрамягкими рентгеновскими лучами. - Тр. ИФ АН ЭССР, 1985, т. 57, с. 129-146.
11. Гантмахер В.Ф., Левинсон И.Б., Рассеяние носителей тока в металлах и полупроводниках. - М.: Наука, 1984.
12. Sparks M., Mills D.L., Warren W. et al. Theory of electron-avalanche breakdown in solids. - Phys. Rev., 1981, vol. B24, N 6, p. 3519-3536.
13. Elango, M., Fruulmann J., Zhurakovski A.P. Recombination luminescence and energy transfer in ionic crystals at XUV excitation by synchrotron radiation. - Phys. status solidi (b), 1983, vol. 115, N 2, p. 399-407.
14. Henry C.H., Lang D.V. Nonradiative capture and recombination by multiphonon emission in GaAs and GaP. - Phys. Rev., 1977, vol. B15, N 2, p. 989-1016.
15. Калнин Ю.Х. Некоторые вопросы кинетики рекомбинационных процессов в кристаллофосфорах. - В кн.: Радиационная физика VII. Рига: Зинатне, 1973, с. 115-142.
16. Kadchenko V.N., Elango M. Diffusion parameters of hot holes created by ionizing radiation in NaCl(Ag). - Phys. stat. solidi. (a), 1978, vol. 46, N 2, p. 315-319.
17. Алукер Э.Д., Лусис Д.Ю., Чернов С.А. Электронные возбуждения и радиолуминесценция ионных кристаллов. - Рига: Зинатне, 1979.
18. Клиндгер М.И., Луцик Ч.Б., Машовец Т.В., Холодарь Г.А., Шейнкман М.К., Эланго М.А. Создание дефектов в твердых телах при распаде электронных возбуждений. - УФН, 1985, т. 147, вып. 3, с. 523-558.

ELEMENTARY PROCESSES ON THE EXCITATION OF
LUMINESCENCE OF SOLIDS BY SOFT X-RAYS

M. Elango

S u m m a r y

The luminescence of solids excited by x-rays is considered as a sequence of several elementary processes: 1) photoelectric absorption, 2) decay of x-ray excitation, 3) inelastic electron-electron scattering, 4) electron-phonon scattering, 5) localization and recombination of electronic excitations, 6) radiative decay of electronic excitations. A brief quantum-mechanical description of the efficiencies of these processes and the corresponding experimental data for ionic crystals are given.

ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНАЯ ДОЗИМЕТРИЯ β -ИЗЛУЧЕНИЯ

В.И. Готлиб, В.Л. Гребенщиков, П. Заре,
Л.Н. Канторович, Е.А. Немиро

Теоретически и экспериментально подтверждена возможность использования термолюминесцентных детекторов обычной толщины с низким коэффициентом теплопроводности для определения поверхностной дозы β -излучения. Фактор коррекции определяется на основе информации о температуре максимума кривой термовысвечивания (КТВ) в детекторах LiF+тефлон, зависящей от распределения захваченных носителей, и соответственно E_{max}^{β} . Регистрация КТВ осуществляется при быстром нагреве (30 Kc^{-1}) детекторов, необходимым для создания значительных температурных градиентов в нем.

Введение

Термолюминесцентный метод дозиметрии β -излучения сталкивается в настоящее время с известными трудностями, связанными с искажением поля излучения термолюминесцентным (ТЛ) детектором. Отклик ТЛ-детектора оказывается зависящим от максимальной энергии β -частиц, толщины детектора, его прозрачности к испускаемому свету и падает для детекторов обычной толщины при уменьшении E_{max}^{β} ниже нескольких Мэв [1]. Погрешность в определении поверхностной дозы, определяемой как поглощенная доза в ткани на глубине от 5 до 10 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$, при неизвестном спектральном составе β -излучения может достигать двух порядков по величине. Предложено несколько способов решения этой проблемы, суть которых сводилась к созданию ультратонкого термолюминесцентного детектора или детектирующего слоя, в толщине которого не происходило бы заметного ослабления β -излучения [2-5]. Недостатками таких детекторов являются: низкий порог чувствительности, сложности практического использования, значительный разброс детекторов по чувствительности. В последнее время наметился принципиально другой подход к этой проблеме с использованием ТЛ-де-

текторов обычной толщины, основанный на использовании конечных значений коэффициентов теплопроводности термоллюминесцентных веществ [6-8]. Авторы [6, 7] предложили производить последовательное высвечивание слоев ТЛ-детекторов нагревом с помощью импульсного CO_2 -лазера. Временная зависимость ТЛ-отклика содержит информацию о распределении дозы в детекторе. В работе [8] была продемонстрирована принципиальная возможность определения вклада β -излучения в смешанном β - γ -поле при использовании быстрого нагрева ТЛ-детекторов LiF +тефлон с низким коэффициентом теплопроводности.

В настоящей работе проведен анализ условий создания значительных температурных градиентов в LiF +тефлон-детекторах и возможностей получения информации о распределении дозы в них при регистрации кривой термовысвечивания (КТВ) с целью корректировки энергетической зависимости ТЛ-отклика.

Термоллюминесценция при неравномерном распределении ловушек по образцу

Предположим, что первоначальная концентрация захваченных носителей $n(x, 0)$, пропорциональная поглощенной дозе в ТЛ-детекторе, носит экспоненциальный характер:

$$n(x, 0) = n_0 \exp(-\mu x), \quad (1)$$

где n_0 пропорционально поверхностной дозе, μ - коэффициент поглощения β -излучения. Это предположение не является строгим, однако, во многих случаях поглощения β -излучения оно справедливо или позволяет достаточно хорошо аппроксимировать более сложный характер поглощения [2, 9]. Полная интенсивность термоллюминесценции для образца толщиной H равна [10]

$$I(t) = \int_0^H I(x, t) \exp[-k_p(H-x)] dx. \quad (2)$$

В случае кинетики первого порядка

$$I(x, t) \sim n_0 \exp(-\mu x) S(x, t) \exp\left[-\int_0^t S(x, \tau) d\tau\right], \quad (3)$$

где

$$S(x, t) = S_0 \exp \left[- \frac{E}{k_B T(x, t)} \right] \quad (4)$$

Член $e^{-k_\nu(H-x)}$ учитывает самопоглощение света в материале детектора, k_ν - коэффициент самопоглощения. Выражение (2) позволяет рассчитывать кривые термовысвечивания, если известен температурный режим образца, т.е. функция $T(x, t)$ и константы μ и k_ν .

При отсутствии градиента температур по образцу (т.е. $T(x, t)$ не зависит от x) вместо (2) получаем

$$J(t) = n_0 f(\mu, k_\nu) J_0(t), \quad (5)$$

где

$$J_0(t) \sim S(t) \exp \left[- \int_0^t s(\tau) d\tau \right], \quad (6)$$

а

$$f(\mu, k_\nu) = [\exp(-k_\nu H) - \exp(-\mu H)] / (\mu - k_\nu) \quad (7)$$

Таким образом, в этом случае форма КТВ получается та же, что и при равномерном распределении захваченных носителей ($\mu \rightarrow 0$) в прозрачном детекторе ($k_\nu = 0$), значение же интенсивности КТВ изменяется на множитель $f(\mu, k_\nu)$.

Результаты и обсуждение

Температурный режим детекторов LiF+тефлон рассчитывался по модели неидеального теплового контакта при линейном возрастании температуры нагревательного элемента [10]. В работе использовались детекторы LiF+тефлон размером 3 x 0,8 мм производства "Dohna" ГДР. Коэффициент k_ν определялся для длины волны, соответствующей максимуму спектра свечения LiF-Mg, Ti (410 нм) в образцах LiF+тефлон различной толщины. Найденное значение $k_\nu = 45 \pm 5 \text{ см}^{-1}$ близко по величине к значению $37,7 \text{ см}^{-1}$, полученному для образцов CaF₂+тефлон в работе [11].

Облучение детекторов проводилось во ВНИИМ им. Д. Менделеева на источниках ^{14}C ($E_{\text{max}}^{\beta} = 0,156$ Мэв), ^{147}Pm ($E_{\text{max}}^{\beta} = 0,224$ Мэв) и ^{204}Tl ($E_{\text{max}}^{\beta} = 0,763$ Мэв). Значение коэффициентов M определялось по данным об ослаблении β -излучения различных источников в LiF , приведенных в работе [8]. Регистрация термолюминесценции проводилась на установке ДТУ-01.

При отсутствии градиента температур по образцу, что имеет место в случае большинства известных термолюминофоров с коэффициентом теплопроводности λ , близким к λ_{LiF} (14 Вт/м·К) [10], как видно из (5)-(7), уменьшение E_{max}^{β} β -излучения приводит в результате увеличения значения M к уменьшению отклика ТЛ-детектора при одинаковом значении поверхностной дозы. Именно этим обстоятельством и объясняется наблюдаемая во многих работах [1, 12, 13] энергетическая зависимость ТЛ-отклика, так как сравнение по отношению к отклику от источника ^{60}Co проводилось на основе регистрации доз β -излучения с помощью экстраполяционной камеры. Постоянство дозы на достаточно большом расстоянии между электродами в воздухе (больше Н), зафиксированное с помощью экстраполяционной камеры для β -излучения с различным значением E_{max}^{β} , свидетельствует лишь о постоянстве поверхностной дозы при помещении в данную точку ТЛ-детектора с гораздо большей объемной плотностью.

Оценка фактора коррекции $f(M, \kappa, \mu)$ при использовании обычных ТЛ-детекторов возможна лишь при знании значения $M(E_{\text{max}}^{\beta})$, то есть величины, далеко не всегда известной в практической дозиметрии. Возможность определения этого фактора появляется при использовании ТЛ-детектора с низким коэффициентом λ .

При возникновении в процессе высвечивания градиента температуры по ТЛ-детектору неравномерное распределение захваченных носителей влияет не только на изменение интенсивности, но и на форму КТВ, благодаря чему может быть получена информация о распределении носителей и соответственно об энергетических параметрах β -излучения.

Проведенные расчеты показали, что в детекторах толщиной 1 мм с коэффициентом теплопроводности $\lambda = 0,01 \lambda_{\text{LiF}}$ в диапазоне скоростей нагрева $25+45 \text{ Кс}^{-1}$ возникает разность

температур в десятки градусов по толщине детектора. В этих условиях происходит уширение КТВ, а положение T_m становится зависящим от λ . Из доступных в настоящее время ТЛ-детекторов лишь LiF+тефлон обладает столь низким значением коэффициента теплопроводности ($\lambda = 0,25$ Вт/м·К). Расчеты показали, что оптимальной для детекторов LiF+тефлон является скорость нагрева $v \approx 30$ Кс⁻¹. При такой скорости нагрева T_m пика высвечивания при равномерном распределении носителей (крайний случай) не превышает температуры размягчения детектора.

Результаты конкретного расчета температурного режима для детектора LiF+тефлон толщиной 0,8 мм при $v = 30$ Кс⁻¹ приведены на рис. 1. Можно считать, что по детектору движется

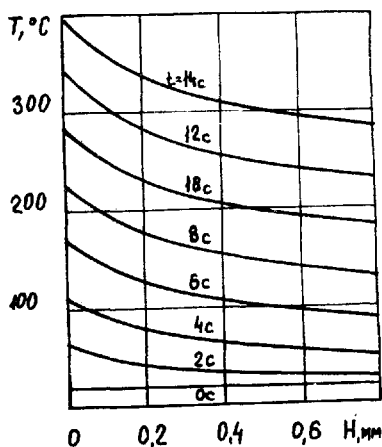


Рис. 1. Температурный режим детектора LiF+тефлон толщиной 0,8 мм при возрастании температуры нагревательного элемента со скоростью 30 Кс⁻¹.

Fig. 1. Temperature regime of a 0.8 mm-thick LiF+PTFE detector at the heating rate $v=30$ Кс⁻¹ of the heating element.

тепловой фронт, так что происходит как бы его послойное высвечивание. В районе T_m КТВ разность температур между верхом и низом детектора составляет ≈ 100 К.

Нами были рассчитаны КТВ для детекторов LiF+тефлон толщиной $H = 0,8$ мм при скорости нагрева $v = 30$ Кс $^{-1}$, облученных β -излучением различной энергии E_{\max}^{β} . Результаты расчета зависимости температуры максимума КТВ T_m от $\mu(E_{\max}^{\beta})$ приведены на рис. 2. Видно, что полученные экспериментальные значения T_m достаточно хорошо соответствуют теоретическим,

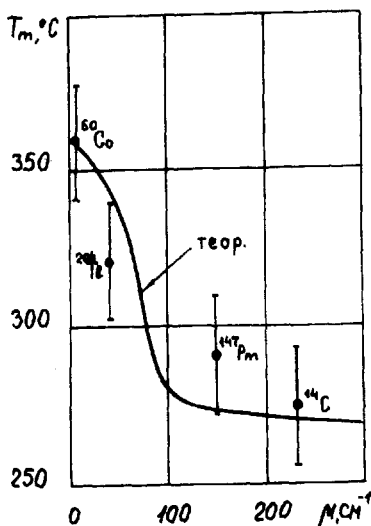


Рис. 2. Зависимость T_m КТВ LiF+тефлон от линейного коэффициента поглощения β -излучения.

Fig. 2. Dependence of the T_m of the LiF+PTFE glow curve on the linear coefficient of the absorption of β -radiation

подтверждая возможность корректировки ТЛ-отклика для оценки поверхностной дозы определением величины \mathcal{F}' по значению T_m , регистрируемой КТВ после соответствующей калибровки данного детектора в полях β -излучения с различной E_{\max}^{β} . Калибровочный фактор \mathcal{F}' будет отличаться от величины, определяемой выражением (7), поскольку он зависит от времени высвечивания, поэтому значение \mathcal{F}' должно определяться для интенсив-

ности в максимуме пика высвечивания. Результаты данной работы подтверждают принципиальную возможность получения информации об энергетических параметрах β -излучения, используя относительно доступные детекторы LiF+тефлон и проводя измерения в обычных установках по регистрации термоллюминесценции. Следует сказать о некоторых трудностях, связанных с регистрацией КТВ при повышенных скоростях нагрева. Расчет показывает и эксперименты подтверждают тот факт, что при определенной величине диапазона изменений сопротивления теплового контакта [10] возрастает разброс значений T_m с увеличением скорости нагрева. Температурная область колебаний T_m , равная 20° при $v = 4 \text{ Кс}^{-1}$, расширяется до 50° при $v = 30 \text{ Кс}^{-1}$ (этим объясняется большая погрешность в T_m на рис. 2), что требует принятия специальных мер по стабилизации теплового контакта (например, прижима детектора). Отметим также, что детектор LiF+тефлон является далеко не оптимальным веществом из-за значительного коэффициента самопоглощения, что не только уменьшает чувствительность метода, но и сужает диапазон зависимости T_m от E_{max}^β (рис. 2).

Поиск новых Тл-детекторов с низким значением коэффициента теплопроводности и незначительным светопоглощением сможет существенно повысить точность определения поверхностной дозы при их использовании в β -дозиметрии.

Литература

1. Becker K. Solid State Dosimetry. - Cleveland: CRC Press, 1973.
2. Осанов Д.П., Шахс А.И. Дозиметрия бета-излучения с помощью термоллюминесцентных детекторов LiF-фторопласт. - В кн.: Люминесцентные приемники и преобразователи ионизирующего излучения. - Новосибирск: Наука, 1985, с. 124.
3. Christiansen P. TLD for beta dosimetry. - In: Proc.Int. Beta Dosimetry Symp. Washington, 1983, p. 93.

4. Pradhan A.S., Bhatt R.C. Graphite - mixed CaSO_4 -Dy Teflon TLD discs for beta dosimetry. - Phys. Med. Biol., 1977, vol. 22, p. 873.
5. Uchrin G. A new type of extremity dosimeter. - Nucl. Inst. Meth., 1980, vol. 175, p. 173.
6. Quam W. Beta dosimetry using laser heating of hot-pressed TLD-s. - Health Phys., 1983, vol. 41, p. 75.
7. Braunlich P., Tetzlaff W. CO_2 - laser heating in thermoluminescent dosimetry of beta particles. - Health Phys., 1984, vol. 47, p. 137.
8. Sahre P. A new method for discriminating β - and γ -doses in thick TL dosimeters. - Nucl. Inst. Meth., 1983, vol. 217, p. 525.
9. Paliwal B.R., Almond P.R. Applications of cavity theories for electrons to LiF dosimeters. - Phys. Med. Biol., 1975, vol. 20, p. 547.
10. Gotlib V.I., Kantorovich L.N., Grebenshikov V.L., Bichev V.R., Nemiro E.A. The study of thermoluminescence using the contact method of sample heating. - J. Phys. D.: Appl. Phys., 1984, vol. 17, p. 2097.
11. Hübner K., Lange R., Negwer D., Heninger J. LET Abhängigkeit des Messeffektes von CaF_2 Detektoren verschiedener Konfiguration und Reichweitmessungen schwerer geladene Teilchen in diesen Detektoren. - Kernenergie, 1980, Bd. 23, S. 411.
12. Koszynski A., Wolska-Witer M., Botter-Jensen L., Christiansen P. Graphite - mixed non transparent LiF and $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$: Mn TL Dosimeters combined with a two side reading system for beta-gamma dosimetry. - In: Proc. 4th Int. Conf. Luminescence Dosimetry, Krakow, 1974, p. 641.
13. Bence L., Uchrin G., Biro T. - In: Proc. 4th Int. Conf. Int. Radiat. Prot. Ass., 1977, p. 1261.

THERMOLUMINESCENCE DOSIMETRY OF β -RADIATION

V.I. Gotlib, V.L. Grebenshchikov, P. Zare
L.N. Kantorovich, E.A. Nemiro

S u m m a r y

It has been confirmed theoretically and experimentally that thermoluminescence detectors of normal thickness with low thermal conductivity may be used to determine the skin dose of β -radiation. Correction factor has been determined from the temperature of the TL peak maximum of the glow curve in LIF+PTFE detectors, the glow depending on the distribution of trapped charges and, accordingly, on E_{\max} . Registration of the glow curve has been carried out at a rapid heating (30 Ks^{-1}) of detectors, which in to create significant temperature gradients in it.

УСЛОВИЯ ФОРМИРОВАНИЯ ШПУРОВ КОМПТОН-ЭЛЕКТРОНОВ В ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ДЕТЕКТОРАХ

М.-Л.Ю. Аллсалу, И.П. Керимяз, Л.А. Пунг,
Ф.А. Савихин, В.О. Семан

В работе приводятся результаты изучения возможностей расширения линейной области при гамма-облучении термоллюминофоров со сверхлинейными эффектами, разрабатываемых для дозиметрии быстрых нейтронов в смешанных нейтрон-гамма-потоках. Иллюстрируется влияние кинетики рекомбинационных процессов, миграционных потерь и неравномерного распределения примесей по объему на дозные характеристики термоллюминофоров.

Еще в начале шестидесятых годов для регистрации быстрых нейтронов в смешанных нейтрон-гамма-потоках Ч.Б. Луцик, А.Д. Соколов и И.В. Яэк предложили использовать термоллюминофору, в которых повышение чувствительности к протонам отдачи водородосодержащего конвертера относительно чувствительности к гамма-квантам (комптон-электронам) достигается за счет использования сверхлинейной зависимости сигнала термоллюминесценции от объемной плотности возбуждения. К настоящему времени с использованием этого принципа разработаны следующие термоллюминофору:

а) термоллюминофору с одним пиком термовысвечивания (ТВ) для измерения доз быстрых нейтронов, в которых за счет сверхлинейных эффектов чувствительность к гамма-квантам предельно подавлена [1, 2];

б) термоллюминофору с одним пиком ТВ для дозиметрии, в которых биологические эффективности быстрых нейтронов и гамма-квантов выравнены сверхлинейным ростом сигнала ТВ с увеличением ЛПЭ излучения [2, 3];

в) термоллюминофору с двумя пиками ТВ для отдельной регистрации доз быстрых нейтронов и гамма-квантов; относительная чувствительность пиков к вышеуказанным видам излучения существенно различается [4, 5];

К сожалению, реализуемые в разрабатываемых термолуминофорах беспороговые (или с низкоэнергетическим порогом до нескольких электрон-вольт) механизмы сверхлинейных явлений проявляются не только при изменении ЛПЭ, но и дозы ионизирующего излучения, в результате чего область линейного роста сигнала ТВ с дозой гамма-излучения, определяющая рабочий диапазон детектора, оказывается нередко ограниченной 10-20 рад, что для ряда задач явно недостаточно. Поэтому нами проведен поиск возможностей расширения области линейности при облучении термолуминофоров гамма-квантами.

Несомненно, начало сверхлинейного роста сигнала ТВ с увеличением дозы облучения связано с началом перекрывания шпуров отдельных комптон-электронов. Однако размеры возбужденного объема и распределения отдельных зарядов по объему зависят от целого ряда факторов, основные из которых удалось установить в ходе параллельного исследования люминесцентных и термолуминесцентных характеристик при фото-, гамма- и альфа-облучении кристаллофосфоров разного класса и состава. Основные установленные факторы следующие.

1. Характер кинетики протекающих в отдельных шпурах комптон-электронов рекомбинационных процессов.

2. Величина миграционных потерь, т.е. энергетических потерь при передаче энергии от основного вещества к центрам свечения и захвата.

3. Распределение центров свечения и захвата по объему кристаллофосфора.

Проиллюстрируем влияние этих факторов.

Как известно, кинетика рекомбинационных процессов может быть мономолекулярной, когда расстояние между генетически связанными партнерами, испытавшими локализацию, значительно меньше расстояния между парами, и бимолекулярной, когда ситуация обратная. Естественно, что при повышении плотности ионизации или дозы облучения кинетика переходит из моно- в бимолекулярную. Нам удалось показать (см., напр., [6, 7]), что протеканию мономолекулярных рекомбинаций способствуют а) большие поперечные сечения центров, б) большие концентрации ловушек. В качестве примера на рис. I приведены результаты измерений зависимости сигнала ТВ (S) от интенсивности

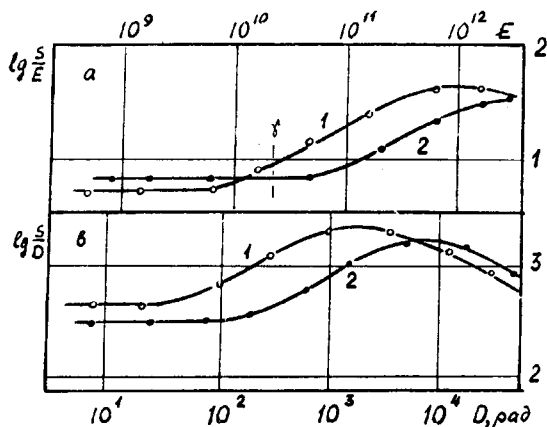


Рис. 1. Зависимости сигнала термолуминесценции (S) от интенсивности (E) фотозвуждения (а) или поглощенной дозы (D) гамма-облучения (б), измеренные на монокристаллах $KCl-In, Ag$ с содержанием $3 \cdot 10^{-3}$ (1) и $3 \cdot 10^{-2}$ мол. % (2).

Fig. 1. The UV intensity (a) and gamma-dose (b) dependences of thermoluminescent response (S) obtained in crystals $KCl-In, Ag$ ($1-3 \cdot 10^{-3}$, $2-3 \cdot 10^{-2}$ mol. % Ag , respectively).

фотозвуждения (E) или дозы гамма-облучения (D), выполненных на монокристаллах $KCl-In, Ag$. Совокупностью экспериментальных результатов [6, 7] показано, что линейный рост сигнала ТВ при низких интенсивностях фотозвуждения (рис. 1а) обусловлен мономолекулярным характером кинетики рекомбинационных процессов. Видно также, что область перехода кинетики из мономолекулярной в бимолекулярную осуществляется при большей интенсивности возбуждения в образцах с большей концентрацией ловушек.

Поведение сигнала ТВ с дозой гамма-облучения (рис. 1б) аналогично фотозвуждению. Однако расчет и сравнение с облучением светом однозначно показывают, что в случае образца с малой концентрацией ловушек уже в шпурях отдельных комп-

тон-электронов осуществляются бимолекулярные рекомбинации, тогда как в образце с большей концентрацией ловушек — мономолекулярные. Поэтому в первом случае начало сверхлинейного роста сигнала ТВ обусловлено началом перекрывания шпуров разных комптон-электронов, во втором случае — переходом кинетики из моно- в бимолекулярную. Как показало проведенное исследование, второй случай реализуется в кристаллофосфорах крайне редко, в большинстве случаев уже в шпурах отдельных компонент комптон-электронов осуществляются бимолекулярные рекомбинации. Это означает, что, несмотря на дискретный характер передачи комптон-электроном энергии основному веществу термолуминофора, элементарные возбуждения даже в щелочногалогенидных кристаллах диффундируют на значительные расстояния ($\gg 100\text{Å}$), усредняя плотность возбуждения по объему и размазывая ее между шпурами. Это приводит к большому различию в объемных плотностях возбуждения, создаваемых, например, протонами и гамма-квантами, чем различие в ЛПЭ этих видов излучения.

На рис. 2 приведены зависимости сигнала ТВ от дозы гамма-облучения для фосфоров $ZnS-Cu, Co, Ni$ с варьируемым содержанием кобальта и никеля и варьируемой методикой приготовления. Из кривых видно, что путем этих вариаций можно сместить начало сверхлинейности из области единиц рад до ~ 300 рад без существенного изменения сверхлинейности. Прямыми опытами показано, что в данном случае расширение линейного участка происходит за счет увеличения вероятности безызлучательных рекомбинаций электронных возбуждений при движении их от места рождения к "рабочим" центрам свечения и захвата. Любопытно отметить, что эффективность термолуминесценции в области малых поглощенных доз (плато) различается для приведенных термолуминофоров значительно сильнее, чем в области доз выше $(1+3) \cdot 10^5$ рад ($\sim 5 \cdot 10^{19}$ эВ/см³). Согласно экспериментальным данным указанная поглощенная доза гамма-квантов создает в ZnS плотность разделенных зарядов, эквивалентную плотности в треке альфа-частиц. Это подтверждается тем, что с ростом миграционных потерь величина α/μ — отношения, т.е. отношения сигналов ТВ после облучения образца равными поглощенными дозами альфа-частиц и гамма-квантов

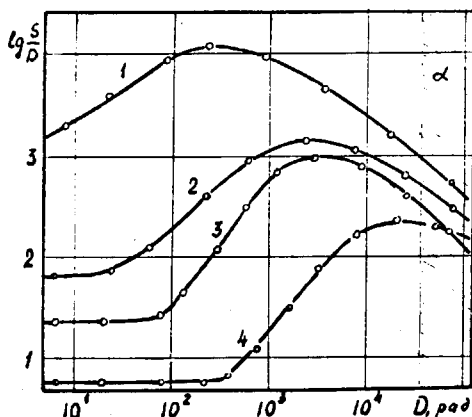


Рис. 2. Изменение зависимости сигнала термолуминесценции (S) от дозы гамма-квантов (D) для фосфоров $ZnS-Cu, Co, Ni$ величина миграционных потерь в которых возрастает с увеличением номера возле соответствующей кривой.

Fig. 2. The influence of the migration losses on the gamma-dose dependences of thermoluminescence (S) in powder samples $ZnS-Cu, Co, Ni$. The migration losses increase with the number of the curve.

на линейном плато возрастает. При этом оказывается, что между измеренной величиной α/μ -отношения и величиной, вычисленной из кривой зависимости сигнала от дозы гамма-облучения, имеет место прямопропорциональная взаимосвязь. Таким образом, повышение избирательности за счет миграционных потерь приводит к понижению чувствительности термолуминофора к гамма-квантам в области отсутствия перекрытия шпуров.

Перейдем далее к рассмотрению результатов, полученных на CaS -фосфорах, отличающихся методикой приготовления и содержанием примесей (рис. 3). Из приведенных на рис. данных видно, что и в этих образцах начало области сверхлинейности изменяется от нескольких рад до 200-300 рад. Сразу же отметим, что и в CaS -фосфорах в шпурах отдельных комптон-элект-

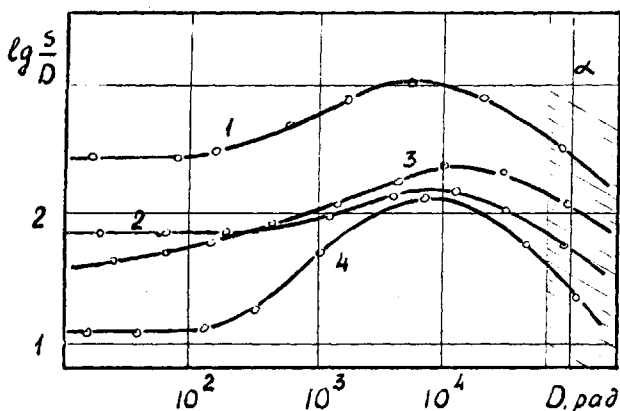


Рис. 3. Зависимость сигнала термолуминесценции S от дозы D гамма-облучения образцов $\text{CaS-Bi, Na, Zn, Ni}$ приготовленных по разным методикам с варьируемым содержанием примесей.

Fig. 3. The gamma-dose dependences of the thermoluminescence (S) obtained in $\text{CaS-Bi, Na, Zn, Ni}$ with different concentration of dopants and/or variable heating conditions.

ронов осуществляются бимолекулярные рекомбинации. Однако данные существенно отличаются от приведенных для ZnS -фосфоров. Так, из приведенных кривых видно, что в данном случае смещение области сверхлинейности сопровождается существенной трансформацией сверхлинейных эффектов и наблюдается относительно большой разброс кривых в области поглощенных доз выше 10^5 рад. Проведенный цикл исследований, включающий изменение последовательности введения примесей, атмосфер и режимов прокалки, а также кинетические рассмотрения привели нас к заключению, что в приведенных случаях расширение линейной области обусловлено неравномерным распределением примесей по объему образца, в результате чего изменяется не только число, но и поперечные сечения сложных центров захвата. К сожа-

лении, привлечение метода ЭПР для выявления изменения структуры соответствующих центров не дало положительных результатов: был обнаружен целый ряд парамагнитных центров, испытывающих перезарядку при облучении, но ни один из них не удалось сопоставить вышеуказанным центрам.

Следует отметить, что определение эквивалентной альфа-частицам дозы гамма-облучения с помощью CaS -фосфоров дает большее значение, чем полученное на ZnS -фосфорах. Начало перекрывания треков альфа-частиц в CaS -фосфорах наблюдается также при более высоких поглощенных дозах. Проведенные на разных классах кристаллофосфоров измерения показали, что названные параметры определяются в первую очередь концентрацией "рабочих" центров свечения и захвата, а не особенностями основного вещества. Это и понятно, так как из измерений следует, что усредненная по объему плотность поглощенной энергии в альфа-треке достигает 10^{20} эВ/см³, тогда как концентрация разделенных зарядов в термолуминофорах обычно не превышает 10^{17} см⁻³.

Таким образом, путем изменения физикохимических условий приготовления кристаллофосфоров можно существенно расширить "рабочий" диапазон термолуминофоров со сверхлинейными явлениями. Однако возможность расширения диапазона очень существенно зависит от реализуемых вариантов (а, б или в). В этом отношении принципиально более широким диапазоном обладают термолуминофоры с двумя пиками ТВ (вариант в), поскольку в них нет необходимости реализовывать высокую степень избирательности.

Литература

1. Кузьмин В.В., Лущик Ч.Б., Савихин Ф.А., Соколов А.Д., Яэк И.В. Термолуминесцентный детектор быстрых нейтронов. - Атомная энергия, 1967, т. 22, вып. 6, с. 481-488,
2. Jaek I., Savikhin F., Käeembre H. LET Dependence of TSL and TSEE Yield as a Basis for Fast Neutron Dosimetry Method. - In: Proc. 4th Int. Conf. Luminescence Dosimetry. Krakow, 1974, p. 565.

3. Язк И.В. Избирательная люминесцентная дозиметрия быстрых нейтронов на основе кристаллов АПВУ: Дис. ... д-ра физ.-мат. наук. Тарту, 1975.
4. Lucas A.C. and Kapsar B.M. The Thermoluminescence of Thallium Doped Calcium Flouride. - In: Proc. 5th Int. Conf. Luminescence Dosimetry. Sao Paulo, 1977, p. 131-139.
5. Edward X Bank and Richard B. Teys. Neutron Dosimetry with $\text{CaF}_2\text{-Tl}$. - IEE Transactions, 1979, vol 5-26, N 1, p. 1590-1592.
6. Денкс В.П., Лейман В.И., Луканцевер Н.Л., Савихин Ф.А. Молекулярные и биомолекулярные рекомбинации и
- ФТТ, 1970, № 12, с. 1455-1458.

THE FORMATION OF COMPTON-ELECTRON TRACES
IN THERMOLUMINESCENT DETECTORS

M.-L. Allsalu, M. Kerikmäe, L. Pung,
F. Savikhin, V. Seeman

S u m m a r y

The possibilities of extending the linear region of gamma-dose dependence are investigated in the thermoluminescent materials with superlinear effects which are used in personal fast-neutron dosimetry. The influence of the character of recombination processes, migration losses and nonrandom defect distribution on the extension of the linear region is illustrated.

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕРМОЛМИНОФОРОВ С ИЗМЕНЯЮЩИМСЯ ОТ ЛПЭ СООТНОШЕНИЕМ МЕЖДУ ПИКАМИ

И.Х. Шавер, В.Д. Егоров, В.Д. Рожков

В работе приведены некоторые результаты исследования луминофоров LiF и $\text{CaF}_2:\text{Tm}$, для которых характерно изменение соотношения между пиками термовисвечивания с изменением ЛПЭ.

На порошках луминофорах $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ достигнута чувствительность $1,3 \cdot 10$ квант·г·рад при гамма-облучении. Показана возможность регистрации малых доз быстрых нейтронов (порядка 10^{-2} рад) в смешанном поле.

Несомненный интерес для дозиметрии в смешанных полях излучения с точки зрения возможности прямого или косвенного (например, через радиатор протонов) избирательного детектирования нейтронов представляет изменение формы кривой термовисвечивания (КТВ) некоторых луминофоров в зависимости от линейной передачи энергии (ЛПЭ).

Для луминофоров на основе LiF характерна различная эффективность запасаения светосуммы на мелких (соответствующих пикам до 200°C) и глубоких (соответствующих пикам более 250°C) уровнях захвата при различных ЛПЭ. Это свойство LiF позволило рекомендовать эти луминофоры для детектирования тяжелых заряженных частиц, ускоренных ионов и нейтронов в смешанных полях [1-8].

Рассмотрение известных КТВ LiF , например, TLD-100 показывает, что интенсивность дозиметрического пика при гамма-облучении на порядок и более превосходит интенсивность пика при 250°C , а при облучении нейтронами это отношение значительно уменьшается. Несмотря на это, можно говорить лишь об ограниченном использовании LiF в качестве индивидуального детектора смешанного излучения, особенно в полях со значи-

тельным гамма-фоном, главным образом, из-за низкой чувствительности высокотемпературного пика. Казалось бы, можно применять LiF для регистрации средних и больших доз в смешанных полях, однако, и это не очевидно, т.к. из-за сверхлинейности пика при 250°C указанное отношение сильно зависит от дозы, по крайней мере при дозах более 10 рад. К недостаткам LiF следует отнести также и плохое разделение пиков.

Лукач и Капсар [9] обнаружили эффект изменения соотношения между пиками термовысвечивания с изменением ЛПЭ на люминофоре $CaF_2:Tm$ на основе которого фирма Со. выпускает детекторы TLD-300. Рассмотрение типичной КТВ $CaF_2:Tm$ с основными пиками при 150 и 240°C показывает, что пики при 150 и 240°C хорошо разрешаются как после гамма-, так и после нейтронного облучения; интенсивность пика при 150°C после гамма-облучения в 3 раза выше, чем интенсивность пика при 240°C; интенсивности пиков при 150 и 240°C после нейтронного облучения сравнимы между собой.

Из сравнения КТВ LiF и $CaF_2:Tm$ видно, что чувствительность $CaF_2:Tm$ к обоим видам излучения и в обоих пиках значительно выше по сравнению с LiF.

Это преимущество $CaF_2:Tm$ также упомянутое хорошее разделение пиков при 150° и 240°C позволяет надеяться, что с помощью двухтемпературного считывания информации с этого люминофора можно успешно регистрировать индивидуальные дозы отдельных видов излучения в смешанных полях.

Пусть детектор $CaF_2:Tm$ получил суммарную дозу D_{sum} складывающуюся из дозы нейтронного D_n и гамма-излучения D_g т.е.

$$D_{sum} = D_n + D_g \quad (1)$$

Тогда светосумма S_1 , запасенная в пике при 150°C:

$$S_1 = A_1 D_n + B_1 D_g \quad (2)$$

Аналогично светосумма S_2 , запасенная в пике при 240°C:

$$S_2 = A_2 D_n + B_2 D_g \quad (3)$$

где A_1 , B_1 - чувствительность к нейтронам в пиках при 150 и 240°C соответственно;

B_1, B_2 - чувствительность к гамма-излучению в пиках при 150 и 240° соответственно.

Значения коэффициентов A и B могут быть установлены с помощью калибровки детектора соответственно по источнику нейтронов и по источнику гамма-излучения. Размерность этих коэффициентов может быть $\text{квант} \cdot \text{г}^{-1} \cdot \text{рад}^{-1}$ либо $\text{квант} \cdot \text{рад}^{-1}$ для образцов известной массы.

Из этих выражений получаем:

$$D_h = \frac{B_2 S_1 - B_1 S_2}{A_1 B_2 - A_2 B_1} \quad (4)$$

$$D_g = \frac{A_2 S_1 - A_1 S_2}{A_2 B_1 - A_1 B_2} \quad (5)$$

Имеется ряд работ, посвященных дозиметрическим свойствам $\text{CaF}_2 : \text{Tm} [8-12]$, однако, наблюдается значительное расхождение в значениях коэффициентов A и B . Так, их соотношения могут изменяться в следующих пределах:

$$\frac{A_1}{A_2} = 0,5 - 1,3; \frac{B_1}{B_2} = 1,1 - 3,0; \frac{A_1}{B_1} = 0,024 - 0,133; \frac{A_2}{B_2} = 0,087 - 0,220.$$

Для сравнения приведем наиболее характерные значения соотношений между коэффициентами для пиков при 200 и 250°С в

$$\frac{A_1}{A_2} = 2,5; \frac{B_1}{B_2} = 2,5; \frac{A_1}{B_1} = 0,1; \frac{A_2}{B_2} = 1,0.$$

Технология синтеза люминофоров в [8, 10-12] не приводится, тем не менее ссылки на [9] позволяют судить о том, что исходным материалом для исследуемых образцов является монокристалл $\text{CaF}_2 : \text{Tm}$ выращенный по методу Стокбаргера.

Нами выращены такие монокристаллы в вакууме (10^5 мм рт. ст.) на установке, в которой кристаллизация осуществляется перемещением графитового тигля с затравочным каналом со скоростью 10-15 мм·час⁻¹ при температурном градиенте 7,5°С·мм⁻¹.

КТВ полученных монокристаллов и по форме и по положению пиков близки к данным работы [9], однако, выход ТЛ наших об-

разцов оказался в 4-5 раз ниже, чем в [9]. Отметим, что хотя значения выхода ТЛ $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ в приведенных выше ссылках не указаны, они с достаточной степенью достоверности могут быть установлены из сравнения с выходом ТЛ других известных люминофоров. Так, из [9] в которой в одном масштабе представлены КТВ $\text{CaF}_2:\text{Tm}$, $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ и LiF (TLD-100) можно установить, что выход ТЛ $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ при гамма-облучении составляет величину, близкую к $6 \cdot 10^{11}$ квант $\cdot \text{г}^{-1} \cdot \text{рад}^{-1}$.

Поиск оптимальной технологии синтеза, по нашему мнению, может привести к получению $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ с характеристиками, превышающими известные из литературы. Это мнение основано на том факте, что уже в первых опытах синтеза порошковых люминофоров получены образцы $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ с выходом ТЛ при гамма-облучении до $1,3 \cdot 10^{11}$ квант $\cdot \text{г}^{-1} \cdot \text{рад}^{-1}$. Однако к настоящему времени наиболее чувствительные образцы имеют неудовлетворительное соотношение между коэффициентами А и В.

Рассмотрим возможность регистрации смешанного (гамма + быстрые нейтроны)-излучения на примере образца люминофора $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ с ТЛ-выходом при гамма-облучении $7,4 \cdot 10^{10}$ квант $\cdot \text{г}^{-1} \cdot \text{рад}^{-1}$. Образец - прессованная таблетка диаметром 10 мм и весом 70 мг.

При облучении образца от источника ^{252}Cf (доза нейтронов, оцененная расчетным путем без учета рассеяния нейтронов, составляет 10 рад) получены следующие значения светосуммы:

$$S_1 = 2,56 \cdot 10^{10} \text{ квант}, \quad S_2 = 0,53 \cdot 10^{10} \text{ квант}$$

Для этого образца калибровкой с помощью источников Pu-Be с учетом гамма-фона и ^{226}Ra определены следующие значения коэффициентов А и В в квант $\cdot \text{рад}^{-1}$:

$$A_1 = 4,9 \cdot 10^8; \quad A_2 = 1,68 \cdot 10^8; \quad B_1 = 5,10 \cdot 10^9; \quad B_2 = 9,1 \cdot 10^8.$$

Подставив эти значения в уравнения (4) и (5), получим:

$$D_n = 9,9 \text{ рад}; \quad D_g = 4,0 \text{ рад}.$$

Полученные значения D_n и D_g близки к ожидаемым: по данным работы [13] отношение $D_g/D_n = 0,4$ для источника ^{252}Cf . Оценим минимальную детектируемую этим образом дозу ней-

тронов D_n^{min} . Ее величина зависит от чувствительности регистрирующей установки, т.е. от минимальной измеряемой с заданной точностью светосуммы S^{min} и от состава смешанного поля.

Для большинства стандартных ТЛД-приборов, работающих на детекторах LiF , $D_3^{min} = 10^{-2}$ рад, что выводе ТЛ LiF , равном 10^{10} квант·г⁻¹·рад⁻¹, и массе образца 70 мг дает значение

$$S^{min} = 7 \cdot 10^6 \text{ квант.}$$

Если на установке, имеющей такую чувствительность, измерять ТЛ образца $CaF_2:Tm$ с приведенными выше параметрами, то для случая смешанного поля источника ^{252}Cf получим:

$$S_2^{min} = 7 \cdot 10^6 \text{ квант; } S_1^{min} = 3,3 \cdot 10^7 \text{ квант; } D_n^{min} = 1,3 \cdot 10^{-2} \text{ рад.}$$

Имеется 2 ограничения для нейтронной дозиметрии на $CaF_2:Tm$ в смешанных полях. Первое - ограничение по D_g , связанное с тем, что отношение B_1/B_2 является постоянным лишь до $D_g = 2000$ рад. Второе ограничение - наличие в спектре гамма-излучения квантов с энергией ниже 100-200 кэВ. С одной стороны, при малых E_g сказывается энергетическая зависимость чувствительности $CaF_2:Tm$. Главная же причина этого ограничения заключается в том, что с уменьшением E_g увеличивается ЛПЭ и, следовательно, увеличивается изменение соотношений между пиками. Для $CaF_2:Tm$ характерно постоянство чувствительности на единичную поглощенную дозу в пике при 240° в широком диапазоне ЛРЭ, по крайней мере от 0,55 до 50 кэВ·мкм⁻¹ и уменьшение чувствительности в пике при 150° примерно в 2 раза. (Иной характер изменения чувствительности для LiF : с увеличением ЛПЭ в указанных пределах чувствительность в пике при 250° увеличивается примерно в 3 раза, а чувствительность в дозиметрическом пике уменьшается примерно в 2 раза).

Таким образом, достоинства $CaF_2:Tm$ определяют целесообразность дальнейших исследований с целью поиска оптимальной технологии, позволяющей получить люминофоры с более высокими значениями коэффициентов А и В и их соотношений, в частности A_2/A_1 и A_2/B_2 . В связи с этим наиболее важным представляется изучение природы пиков при 150 и 240° .

Литература

1. Nash A.E., Johnson T.L. LiF (TLD-600) thermoluminescence detectors for mixed thermal neutron and gamma dosimetry. - In: Proc. 5th Int. Conf. Luminescence Dosimetry. Sao Paulo, Brazil, 1977, p. 393-403.
2. Douglas J.A. The effect of LET on the efficiency of dose re-estimation in LiF using UV phototransfer. - Nucl. Instr. Meth., 1980, vol. 175, p. 54-56.
3. Jain V.K. High temperature peaks in LiF TLD; dependence on LET. - Nucl. Instr. Meth., 1980, vol. 180, p. 195-200.
4. Tuyn W.N. Response of LiF (TLD-700) thermoluminescence dosimeters to pions and high-energy neutrons. - Nucl. Instr. Meth., 1980, vol. 175, p. 40-42.
5. Driscoll C.M.H. Studies of the effect of LET on the thermoluminescent properties of thin lithium layers. - Phys. Med. Biol., 1978, vol. 23, p. 777-781.
6. Bartlett D.T., Edwards A.A. The light conversion efficiency of TLD-700 for alpha particles relative to cobalt-60 gamma radiation. - Phys. Med. Biol., 1979, vol. 24, p. 1276-1283.
7. Knipe A.D. Absolute energy deposition measurements in a mixed gamma ray and fast neutron environment. - Radiat. Prot. Dosimetry, 1984, vol. 6, p. 75-78.
8. Hoffman W., Prediger B. Heavy particle dosimetry with high temperature peaks of $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ and ^7LiF phosphors. - Radiat. Prot. Dosimetry, 1984, vol. 6, p. 149-150.
9. Lucas A.C., Kapsar B.M. The thermoluminescence of thallium-doped calcium fluoride. - In: Proc. 5th Int. Conf. Luminescence Dosimetry. Sao Paulo, Brazil, 1977, p. 131-139.
10. Rank E.X., Theus R.B. Neutron dosimetry with $\text{CaF}_2:\text{Tm}$. - In: IEEE Trans. Nucl. Sci., 1979, vol. 26, p. 1590-1592.

11. Temme A., Rassow J., Meissner P. - In: Proc. 4th Symp. Neutron Dosimetry. Munich-Neuherberg, 1981, vol. 2, p. 433-454.
12. Pradham A.S., Bhatt R.C. Phosphorescence and photostimulated luminescence of CaSO_4 -Dy embedded polyethylene discs at elevated temperature for fast neutron dosimetry 4-48662. - Radiat. Prot. Dosimetry, 1984, vol. 6, p. 175-177.
13. Scarpa G. New experimental data on the sensitivity to fast neutrons of a number of sintered commercial TL phosphors 4-48791. - Radiat. Prot. Dosimetry, 1984, vol. 6, p. 313-316.

INVESTIGATION OF THERMOLUMINOPHORS WITH CHANGING
RELATIONS BETWEEN PEAKS, DEPENDING ON LET

I.Kh. Shaver, V.Yu. Egorov, V.D. Rozhkov

S u m m a r y

Some results of the investigation of LiF and CaF_2 : Tm phosphors are shown. These phosphors are characterized by a change in the ratio between glow peaks depending of LET.

For powder phosphors CaF_2 : Tm, the gamma-ray sensitivity up to $1.3 \cdot 10^{11}$ quant. $\cdot\text{g}^{-1}$ has been attained. The registration of small doses of fast neutrons (of the order of 10^{-2} rad) is demonstrated to be possible.

ПРОГРЕСС В ОБЛАСТИ ПРИМЕНЕНИЯ ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ
ПРИРОДНЫХ МИНЕРАЛОВ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ВОЗРАСТА
ГЕОЛОГИЧЕСКИХ И АРХЕОЛОГИЧЕСКИХ ОБЪЕКТОВ

Г.И. Хэтт, А.Н. Молодьков

Дается обзор результатов исследования ТЛ и дозиметрических свойств природного кварца и К-полевых шпатов из осадочных отложений. Приводится анализ оценки природной фоновой радиации. Обсуждаются специфика и проблемы основных методик термоллюминесцентного датирования археологических и геологических образцов. Показана пригодность кварца и К-полевых шпатов в качестве палеодозиметров для оценки событий в соответствующих интервалах 10^3 - 10^5 лет и 10^3 - 10^6 лет. Приводятся результаты датирования.

Три десятилетия назад Даниэльс и др. [1] сформулировал идею возможности использования термоллюминесценции минералов с целью применения последних в качестве природных дозиметров, в том числе для хронологических исследований природных событий. Однако практическая реализация идеи потребовала длительных интенсивных усилий исследователей многих стран, чтобы ТЛ-датирование было включено в номенклатуру археометрических и геохронологических методов.

Основные трудности разработки конкретных методик ТЛ-датирования связаны со сложностями исследования термоллюминесцентных и дозиметрических свойств многопримесных объектов - минералов, являющихся детекторами природного радиационного облучения. ТЛ-датирование по существу является микродозиметрией природной радиации. Такие минералы как кварц и полевые шпаты считаются достаточно чувствительными детекторами, способными запасать и длительное время сохранять радиацию, обусловленную распадом природных радиоактивных элементов ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , входящих в состав минералов, их окружения, а также космическими лучами.

ТЛ-возраст определяется по сравнительно простой формуле:

$$T = \frac{D_A}{D_r} \quad (1)$$

где T - возраст образца, D_A - аккумулярованная детектором доза, D_r - скорость накопления дозы или годовая доза.

Термолюминесцентные и дозиметрические свойства кварца и полевых шпатов

Принципиальные различия методик ТЛ-датирования связаны с особенностями взаимодействия радиационного излучения с веществом. Как известно, пробег α -частиц в породе составляет $\sim 20 \mu$, в то время как проникающая способность β -излучения ~ 2 мм, а γ -лучей - 30 см. Методика мелкой фракции [2] основана на выделении полиминеральной гранулометрической фракции 4 - II μ с последующим осаждением на алюминиевые диски: при подсчете годичной дозы учитываются все компоненты облучения (α -, β -, γ):

$$T = \frac{D_A}{D_r + D_p + kD_\alpha + D_c} \quad (2)$$

где D_α , D_p , D_r - компоненты годичной дозы; D_c - годичная доза, обусловленная космическим излучением; k - коэффициент, определяющий степень селективности детектора к α -излучению по сравнению с γ -излучением

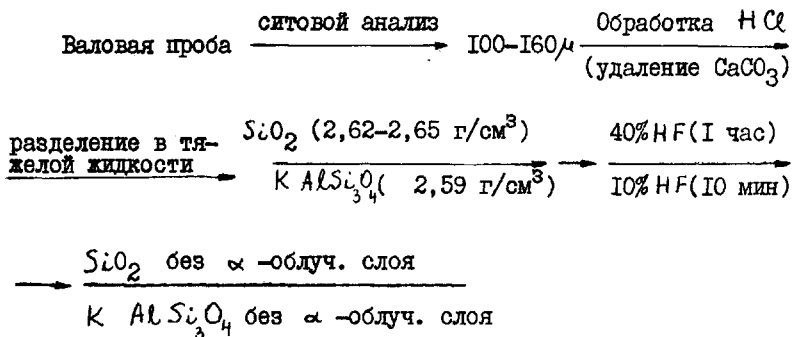
$$\left(k = \frac{T_{\lambda} / \text{rad } \alpha}{T_{\lambda} / \text{rad } \gamma} \right)$$

Вторая широко используемая методика минеральных включений [3] (кварца или полевых шпатов) основана на экстракции мономинеральной фракции (размерами зёрен 100-160 μ ; слой зерна $\approx 20 \mu$, подвергшийся α -облучению, смывается плавиковой кислотой и учитываются лишь β - и γ -компоненты внешнего облучения:

$$T = \frac{D_A}{D_p + D_r + D_c} \quad (3)$$

Кварц не содержит радиоактивных примесей, а полевые шпаты испытывают дополнительное облучение, связанное с ^{40}K , входящим в состав минерала, что также принимается во внимание.

Ниже схематически показан способ получения монокристаллической фракции:



На рис. I. приведены ТЛ-дозиметрические свойства кварца. Следует подчеркнуть, что морфология кривой ТЛ кварца не зависит от генезиса отложений: вне зависимости от региона отбора пробы экстрагированный мономинеральный образец имеет кривую ТЛ с одним максимумом, обусловленным элементарным уровнем захвата, параметры которого определены нами методом Гобрехта [4]. Аномальный фединг не обнаруживался в течение 6 месяцев. Исследования процессов рекомбинаций в области указанного максимума свидетельствуют о II порядке кинетики [5]. Кварц после отжига меняет свою чувствительность (рис. Iб). Наблюдаемое явление сенсбилизации связано скорее всего с тем, что под воздействием температуры отжига происходит "подкачка" дырок на центр свечения. В связи с этим калибровка образцов в лаборатории - построение зависимости ТЛ от дозы - происходит методом "добавочной дозы", т.е. наложением лабораторной дозы на аккумулярованную минералом природную дозу. Наблюдаемая зависимость (рис. Iб, кривая I) состоит из трех стадий, возможное объяснение которых связано с запасанием электронов на имеющихся уровнях захвата (I), насыщении этого процесса (II) и создании новых дефектов под влиянием

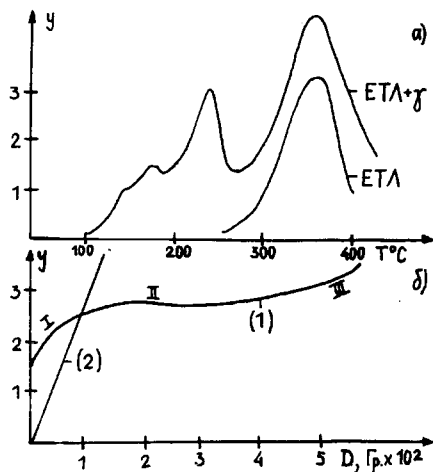


Рис. 1. а) ТЛ-природного кварца (ЕТЛ) и после γ -возбуждения (ЕТЛ + γ);
 б) Зависимость интенсивности ТЛ ($T_{\text{max}} = 350^{\circ}\text{C}$) от дозы (I) и после нагрева до 500°C (2).

Fig. 1. а) TL of natural quartz (ETL) and after an added γ -dose (ETL + γ);
 б) Thermoluminescence dose response curve ($T_{\text{max}} = 350^{\circ}\text{C}$) before (1) and after annealing to 500°C (2).

больших доз облучения. Вся кривая описывается формулой 5

$$y = y_0 (1 - e^{-\alpha(D_A + D_L)}) + b(D_A + D_L) \quad (4)$$

где y - максимум на кривой ТЛ; D_A - аккумулярованная природная доза; D_L - лабораторная калибровочная доза; y_0 , a , b - константы.

Информативной для датирования является лишь I часть кривой. Как видно из рисунка, область насыщения для кварца наступает при ≈ 200 Гр.

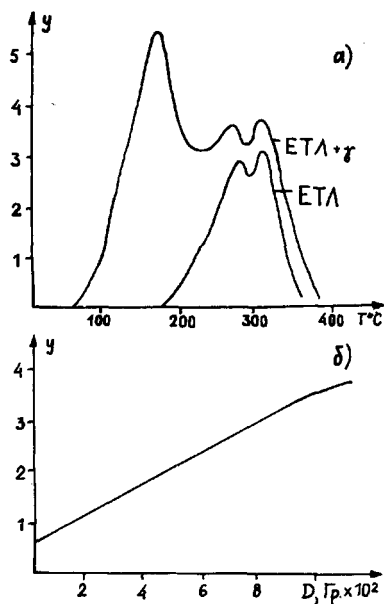


Рис. 2. а) ТЛ природных К-полевых шпатов (ЕТЛ) и после возбуждения γ -дозой (ЕТЛ + γ);
 б) Зависимость интенсивности ТЛ ($T_{\max} = 310^{\circ}\text{C}$) от дозы.

Fig. 2. а) TL of natural K-feldspars (ETL) and after an added γ -dose (ETL + γ);
 б) Thermoluminescence dose response curve ($T_{\max} = 310^{\circ}\text{C}$).

На рис. 2 приведены ТЛ- и дозиметрические свойства К-полевых шпатов, морфология кривой ТЛ которых, по-видимому, носит региональный характер. (Приведена кривая ТЛ К-полевых шпатов из образцов северо-западных регионов.) Время жизни носителей на уровне захвата, обуславливающим $T_m = 310^{\circ}\text{C}$, составляет 10^7 лет.

Для большинства К-полевых шпатов область линейности на кривой зависимости ТЛ в области максимума простирается до

850 Гр, а с учетом экспоненциальной области – до 1000 Гр.

Несмотря на большие сложности получения мономинеральной фракции К-полевых шпатов (в некоторых образцах породы содержание их составляет всего 5%), использование их для целей датирования представляется весьма перспективным по следующим причинам:

1) интенсивность ТЛ К-полевых шпатов в 10–100 раз выше, чем для кварца;

2) область информативности кривой зависимости интенсивности ТЛ от дозы ($T_m = 310^\circ$) существенно больше, что дает возможность расширить интервал датирования;

3) изменения чувствительности с отжигом незначительны.

Определение величины аккумулярованной дозы в области линейности производится графически (экстраполяцией прямой до пересечения с осью абсцисс (рис. 4б), либо по формуле (4).

Годичная доза

Способы оценки годичной дозы различны. Наиболее широко применяются методы α – и γ – спектрометрии (вариант последнего метода разработан и внедрен в нашей лаборатории).

Пересчет концентрации радиоактивных изотопов в дозу производится согласно специальным коэффициентам [6] .

Таблица I

Годичная доза (мрад/год) на 1 р.р.м. концентрации

Annual dose rate (mrad/y) per 1 p.p.m.

	α	β	γ
Серия тория	73,8	2,86	5,14
Серия урана	278,3	14,62	11,48
Природный калий 1% K ₂ O	-	68,2	20,5

Однако в сложнопостроенных негетогенных разрезах с различной мощностью отдельных горизонтов лабораторный контроль

не всегда отражает природную ситуацию. Для контроля γ -компонента дозы была использована ТЛ-дозиметрия непосредственно в разрезе с помощью детекторов $\text{CaSO}_4 \cdot \text{D}_2$. Разница в ходе с жесткостью для этого люминофора и минералов в низкоэнергетической области ($\sim 40 \text{ keV}$) составляет 3-4 раза. Известно, что в цепочках распада ^{238}U , ^{232}Th низкоэнергетическая часть спектра составляет $\leq 5\%$, поэтому при дозиметрировании используются фильтры-контейнеры, отсекающие как β -компонент излучения, так и низкоэнергетическую часть спектра, что не вносит большой погрешности в оценку β -компонента дозы [7].

Средняя годовичная доза в "типичном разрезе" ($\beta + \gamma$ компонент) составляет 200-300 мрад/год. Учитывая область информативности зависимости ТЛ от дозы (рис. 1б, 2б) предел датирования событий с помощью кварца достигает $10^3 - 10^5$ ($1,5 \cdot 10^5$) лет, а при использовании полевых шпатов до 10^6 лет.

Проблема "нуль-момента"

Основное требование к материалу датирования - это отсутствие ТЛ-сигнала к моменту, с которого ведется отсчет времени: в археологии - это момент захоронения, а в геологии - момент седиментации. В археологии отжиг керамического изделия происходит в основном при температурах выше 500°C , что достаточно для опустошения ловушек. В геологии же нулем отчета может быть либо формирование объекта, либо момент седиментации отложений. В последнем случае основным фактором, стирающим прогенетическую светосумму, запасенную минералом с момента его возникновения, является солнечный свет [8], воздействующий на минералы за время их транспорта к месту седиментации (некоторую роль играет также механическая дезинтеграция). Для осадочных пород "нуль-момент" в большинстве случаев реализуется неполностью, что является принципиальной проблемой при ТЛ-датировании. Для некоторых генетических типов, таких как лёссы, например, в результате длинного транспорта к месту седиментации световая экспозиция и механическая дезинтеграция обеспечивают минимальную остаточную светосумму.

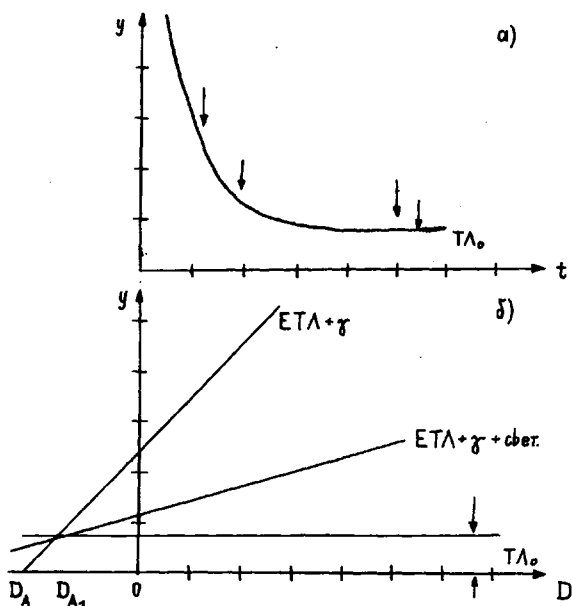


Рис. 3. Изменение интенсивности ТЛ под действием солнечного света (а) и процедура реконструкции остаточной природной светосуммы $TЛ_0$ (б).

Fig. 3. Intensity reduction after sunlight exposure (a) and procedure of unbleached $TЛ_0$ reconstruction (b).

На рис. 3а показан процесс стирания светосуммы под влиянием света. В лучшем случае остаточная светосумма составляет величину $TЛ_0$, в общем же случае $> TЛ_0$. В последние годы предложены некоторые способы реконструкции остаточной светосуммы (рис. 3б). D_A определяется графически как точка пересечения с линией, определяющей уровень $TЛ_0$. (D_{AL}) либо строится семейство прямых: естественная $TЛ + \gamma$, $TЛ + \gamma + \text{свет}$ $D_{A₁}$.

Мы полагаем, что реконструкция природной ситуации, определяемой набором неконтролируемых параметров, в лаборатории

невоспроизводима. Однако используемая методика оценки остаточной светосуммы дает определенную возможность повысить достоверность датировок.

Заключение

Нами осуществлено около 500 ТЛ-датировок. Большинство из них проведено на геологических образцах водно-ледникового генезиса без реконструкции остаточной светосуммы. Была проведена корреляция геохронологической шкалы позднего плейстоцена [10]. Впервые в СССР проведено ТЛ датирование археологических объектов: фрагментов древней керамики с территории Грузии и остатков древних очагов на территории Эстонии. В таблице 2 приведены результаты ТЛ-датирования древних очагов, а на рис. 4 также иллюстрируются результаты ТЛ-датирования одного из геологических разрезов.

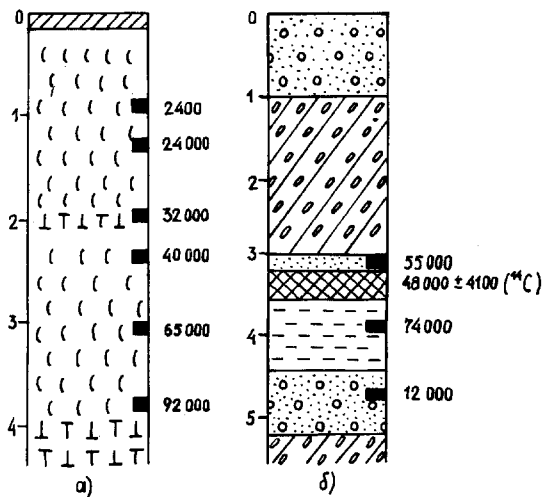


Рис. 4. Разрез Чекалино около поселка Лихвин Калужской области (а) и разрез Каувонкангас в Северной Финляндии (б).

Fig. 4. Chekalino section near Likhvin in the Kaluga District (a) and Kauvonkangas section in Northern Finland (b).

Таблица 2

Результаты ТЛ-датирования древних поселений Эстонии
 TL - dating results of some ancient Estonian settlements

Образец	U x 10^{-6} г/г	T_h x 10^{-6} г/г	K 10^{-2} г/г	D_r рад/год	D_A рад	*ТЛ возраст (лет)	$I4_C$ возраст (лет)
Пада I	3,7	6,4	1,5	0,365	340	930	1100 \pm 45
Пада II	4,32	7,56	1,8	0,421	510	1210	1330 \pm 80
Рысна	2,94	2,98	0,95	0,251	340	1355	
Рысна	2,36	3,28	1,0	0,244	340	1390	
Кыну I	1,68	5,94	1,71	0,323	1527	4210	
Кыну II	0,54	3,92	0,93	0,197	927	4705	
Кыну III	1,28	7,55	2,8	0,438	2084	4760	

* Точность датирования $\pm 10\%$.

В настоящее время в мире функционирует более 30 лабораторий ТЛ-датирования. Основными проблемами помимо "нуль-момента" является отсутствие данных о природе актуальных в датировании центров свечения и захвата, достаточно достоверных моделей механизмов запасаения и высвечивания светосуммы, что для природных многопримесных систем является весьма сложной задачей.

В последние годы бурно развивается ЭПР-метод датирования, предварительные результаты которого достаточно перспективны для определения возраста карбонатных образований, "нуль-момент" которых в большинстве случаев гарантируется моментом образования (в раковинах моллюсков, например).

Таким образом, исследование дозиметрических свойств природных минералов и опыт их применения в геохронологических целях свидетельствует о возможности их использования для длительного хранения радиационной информации.

Литература

1. Daniels F., Boyd C.A. and Saunders D.F. Thermoluminescence as a research tool. - Science, 1953, vol. 117, p. 343-349.
2. Zimmermann D.W. Thermoluminescent dating using fine grains from pottery. - Archaeometry, 1975, 17, p. 122-130.
3. Fleming S.Y. Thermoluminescent dating: refinement of the quartz inclusion method. - Archaeometry, 1970, 12, p. 133-137.
4. Hütt, G., Smirnov, A., Tale I. On the application of thermoluminescence of natural quartz to the study of geochronology of sedimentary deposits. Y. Pact, 1979, vol. 3, p. 362-373.
5. Hütt G., Smirnov A. Thermoluminescence (TL) dating of deposits by means of the quartz and feldspar inclusion. Y Pact, 1983, vol. 9, p. II, p. 463-473.
6. Bell W.T. Thermoluminescence dating: Revised dose-rate data. - Archaeometry, 1977, vol. 19, p. 99-105.

7. Hütt G., Smirnov A., Punning Y.-M. Problem in measuring annual dose. Y. Fact, 1982, vol. 6, p. 27-33.
8. Morozov G. The relative dating of Quaternary Ukrainian sediments by the thermoluminescence method, in VIIIth International Quaternary Association Congress. Paris, 1968, p. 167. USGS Library, Catalogue N^o 208, Washington, DC.
9. Singhvi A.K. and Mejdahl. Thermoluminescence dating of sediments. - Proc. National Symp. Thermally Stimulated Luminescence and Related Phenomena. Preprint. Roskilde, 1984.
10. Hütt G., Punning Y.-M. and Raukas A. Application of TL method to elaborate the geochronological scale of the late pleistocene for the East European plain in the book: Correlation of quaternary chronologies. - Bristol: Geo Books, 1984, p. 47-55.

PROGRESS IN USING THERMOLUMINESCENCE OF NATURAL
MINERALS IN DETERMINING THE AGE OF GEOLOGICAL
AND ARCHAEOLOGICAL OBJECTS

G.I. Hütt, A.N. Molod'kov

S u m m a r y

A review of the peculiarities of TL and dosimetry of natural quartz and K-feldspars from sediments has been made.

Natural background radiation factors are analysed. Main techniques and problems of dating archaeological and geological objects by TL method are discussed. It is shown that quartz and K-feldspars are valid for the time estimation of events correspondingly in the span of $10^3 - 10^5$ and $10^3 - 10^6$ years.

Some results of TL dating in geology and archaeology are demonstrated.

ИССЛЕДОВАНИЕ И РАЗРАБОТКА ТЕРМОЛЮМИНОФОРОВ ДЛЯ ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ДЕТЕКТОРОВ

Ф.И. Косинцев, В.А. Гаркуша, Ю.И. Кузьмин

Приводятся характеристики и технологические процессы получения термоллюминофоров и термоллюминесцентных детекторов. Обсуждаются пути повышения их качества.

Прошло более 300 лет после наблюдения странного "мерцающего света" при нагревании алмазов в темноте (Бойм, 1663). В конце XIX века (Видеман 1895) это явление было использовано для обнаружения излучения. В 30-40-х гг. нашего столетия методу обнаружения и измерения УФ- и рентгеновского излучения, а также существу протекающих процессов был посвящен ряд работ (Лайман, 1935; Рандаль и Улкинс, 1945; Гарлик и Гибсон, 1949; Туси и другие, 1951). Начиная с 50-х гг., когда возможности термоллюминесценции для дозиметрии были продемонстрированы Даниэльсом [1] и Антоновым-Романовским [2], эта тема стала предметом большого интереса. Библиография в настоящее время содержит более 100 наименований. Методы дозиметрии с использованием термоллюминесцентных детекторов (ТЛД) имеют много преимуществ по чувствительности, малым габаритам датчика, диапазону, простоте замеров, прочности, длительности сохранения информации, потенциально низкой стоимости. Они стали ведущими в индивидуальном контроле ионизирующего излучения, радиологии, радиобиологии и окружающей среды.

Явление термоллюминесценции характерно для многих минералов и огромного числа синтетических неорганических соединений [3]. Лишь немногие основы и активаторы обеспечивают обширный ряд специфических требований и ограничений, налагаемых на термоллюминофоры (ТЛ) и ТЛД. Существенную, порой оп-

ределяющую роль играют качество основы, степень ее соответствия стехиометрическому составу, полнота очистки от примесей, физическое состояние, прочность и т.д.

Обширный диапазон химических систем, применяемых в мировой практике в качестве термолуминесцентных материалов, характеризуется и различием люминесцентных характеристик (табл. I) [4].

Наибольшее распространение получили ТЛ и ТЛД на основе фторидов лития и кальция, сульфатов кальция и тетраборатов магния и лития. Однако последние производятся в ограниченном количестве из-за сложной технологии изготовления. Работы по исследованию и разработке ТЛ и ТЛД продолжаются [5].

Известно несколько способов получения ТЛД на основе фторида лития, которые можно разделить на два основных метода: твердофазный синтез и получение из расплава (схема I).

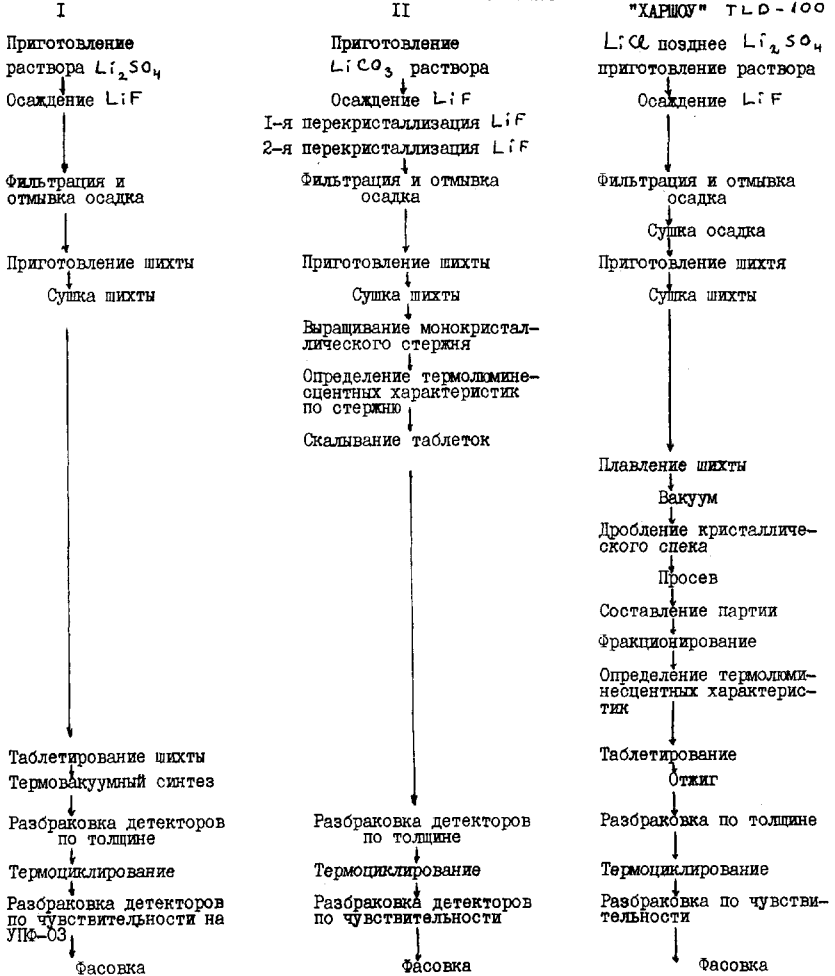
Решающим фактором в синтезе термолуминофоров является получение основы стехиометрического состава с равномерным распределением активаторов.

Получение ТЛ и ТЛД из расплава сопряжено с большими трудностями достижения одинаковых термолуминесцентных характеристик по всему объему королька. Это связано с неравномерным распределением активаторов во фториде лития (коэффициент распределения отличается от единицы), атомы которых в процессе роста кристаллов отщесняются или захватываются фронтом кристаллизации. Не случайно, как известно из мировой практики, эти корольки измельчают, выделяют крупную фракцию, пресуют ее в таблетки и последние отжигают (схема I, поз. 3).

При твердофазном синтезе ТЛ и ТЛД получение основы проводится осаждением из растворов, например сульфата лития соединения $LiF_{(1-x)}Li_2HF_2(x)$. Анион исходного сырья также влияет на термолуминесцентные характеристики продукта. Наиболее эффективный ТЛ получается при использовании сульфата лития. В случае применения гидроокиси лития на кривых термо-высвечивания (КТВ) наблюдается только один пик в области 130°C.

Процесс синтеза ведут в вакууме с испарением части вещества (рисунок) при температуре, близкой к температуре плавления основы, тем самым обеспечивая повышенную диффузию ле-

Получение ТДД на основе LiF
Production of LiF-based TLD
II



Получение термоминифоров на основе бората магния

Production of magnesium-borate-based TLD

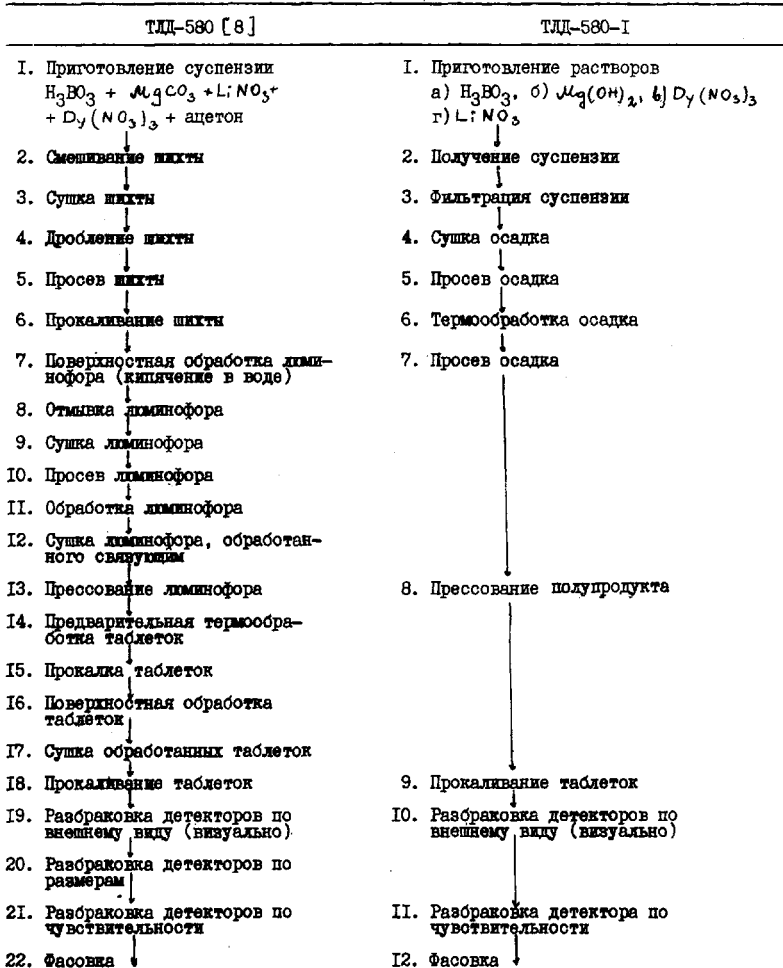


Таблица I

Термолюминесцентные дозиметры, выпускаемые зарубежными фирмами, и их характеристики
 Characteristics of the TL dosimeters produced by foreign firms

Химический состав	Назначение	Относительная чувствительность к γ -излучению	Максимум спектра излучения, нм	Температура дозиметрического пика, °C	Диапазон регистрируемых доз, рад	Эффективный атомный номер,	Фединг, %	Ход с жесткостью	Заметное влияние света на фединг
LiF: Mg, Ti (TLD-100, США)	Индивидуальная дозиметрия γ -излучения	1	400	195	$5 \cdot 10^{-3} - 10^3$	8,2	10 за месяц	1,3	Нет
MgB ₄ O ₇ : Dy	То же	7	480 и 570	210	-	8,4	10 за 2 месяца	1,5	..
Li ₂ B ₄ O ₇ : Mn	"-	0,4	600	210	$1 \cdot 10^{-2} - 10^5$	7,4	10 за месяц	0,98	..
Li ₂ B ₄ O ₇ : Cu, Ag	"-	1	368	185	$5 \cdot 10^{-3} - 10^6$	7,4	10 за месяц	0,98	Да
Li ₂ B ₄ O ₇ : Cu	"-	8	368	205	-	7,4	9 за 2 месяца	0,98	Нет
CaSO ₄ : Tm	Дозиметрия окружающей среды по γ -излучению	3,2	452	210	$1 \cdot 10^{-4} - 10^5$	15,0	10 за месяц	11,5	..
CaSO ₄ : Dy	То же	38	480 и 570	210	$1 \cdot 10^{-4} - 10^5$	15,0	3 за день	11,5	..
CaSO ₄ : Mn	"-	70	500	110	$1 \cdot 10^{-4} - 10^5$	15,0	50 за день	11,2	-
CaF ₂ : Dy	Регистрация больших доз γ -излучения	16	480 и 570	200	$1 \cdot 10^{-4} - 10^5$	16,0	12 за месяц	15,6	Да
CaF ₂ : Mn	То же	5	500	260	$1 \cdot 10^{-4} - 10^5$	16,0	10 за месяц	15,4	-
CaF ₂ (природ.)	"-	23	380	260	$1 \cdot 10^{-3} - 10^5$	10,6	-	14,5	-
MgSiO ₄ : Tb	Индивидуальная дозиметрия γ -излучения	53	552	195	$1 \cdot 10^{-3} - 10^5$	11,0	3 за месяц	4,5	Да
BeO	То же	3,1	200-400	180-220	$1 \cdot 10^{-2} - 10^5$	7,2	5 за месяц	8,7	..
Al ₂ O ₃	"-	5	425	250	$1 \cdot 10^{-3} - 10^5$	10,2	5 за 2 недели	4,5	..

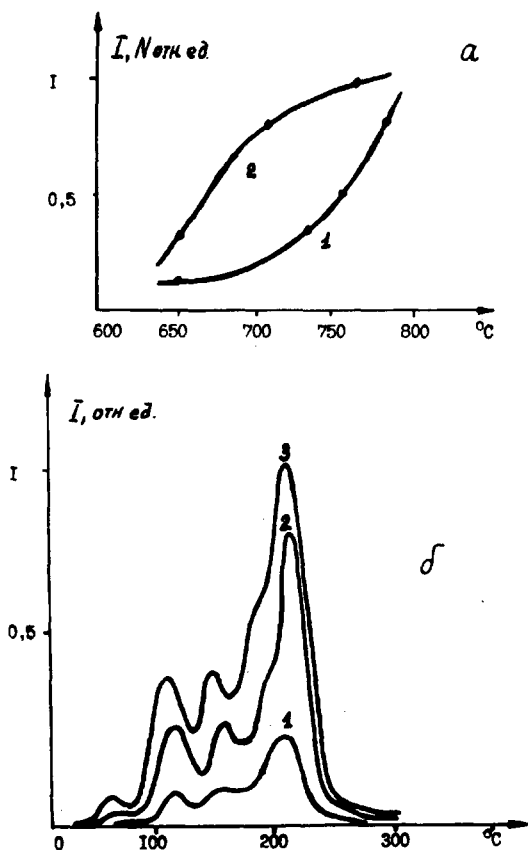


Рис. 1. а - Зависимость интенсивности рабочего пика и потери веса ТЛ на основе фторида лития от температуры прокалики при термовакуумном синтезе: 1 - потери веса, отн.ед.; 2 - интенсивность, отн.ед.

б - Зависимость вида кривых термовысвечивания ТЛ на основе фторида лития от температуры прокалики при термовакуумном синтезе, °С: 1-600, 2-700, 3-800.

- Fig. 1. а) The intensity of the working peak and weight loss of LiF-based TLD versus the temperature of the thermal vacuum treatment; 1) weight loss (relative units), 2) intensity (relative units).
- б) The glow curve of LiF versus the temperature of the thermal vacuum treatment, °C: 1-600, 2-700, 3-800.

гирущих компонентов в основу кристалла (в отличие от формирования продукта в окислительной или в инертной атмосфере). Это способствует более глубокой очистке основы люминофора от примесей, так как давление насыщенных паров фторидов ряда элементов, в т.ч. металлов, значительно выше, чем у фторида лития 6, 7. Кроме того, в этих условиях происходит рекристаллизация зерен, образование керамики, уменьшение дефектности, увеличение прозрачности детектора и, как следствие, увеличение чувствительности, снижение интенсивности низкотемпературных пиков на КТВ и значительно повышается механическая прочность таблеток.

На схеме 2 показана принципиальная технология получения термолюминофоров 8 на основе бората магния. Известный процесс получения бората магния и синтез из него термолюминофора (ТЛД-580) сложен и многостадийен. Вместе с тем детекторы, полученные по этому способу, имеют низкую чувствительность к ионизирующему излучению (табл. 2), большой разброс и низкую механическую прочность. В последние годы считается целесообразным для этих целей использовать синтез бората магния совместно с коактиваторами из раствора. Прокаливание таблеток (ТЛД-580-1), спрессованных из высушенной шихты бората магния с примесью диспрозия, позволяет увеличить выход термоллюминесценции в 1,5-2 раза по сравнению с прежней технологией. Величина разброса по чувствительности в партии сократилась до 18% против 33, а механическая прочность возросла в несколько раз. Технология значительно проще и экономнее. В табл. 3 приведены характеристики ТЛД, полученных различными способами.

Для дозиметрии окружающей среды нашли широкое применение [9] детекторы на основе сульфатов кальция, активированных диспрозием, тулием, марганцем. На схеме 3 приводится принципиальная технология получения ТЛД на основе сульфата кальция, активированного диспрозием (ТЛД-480/570), для регистрации малых доз. Образование основы и ее активация осуществляются при повышенных температурах в присутствии избытка серной кислоты. Последующая термообработка, таблетирование и прокаливание таблеток обеспечивают термоллюминесцентные характеристики, не уступающие лучшим зарубежным образцам.

Таблица 2
Table II
Характеристики термолуминофоров и детекторов
Characteristics of home-made TL phosphors and detectors

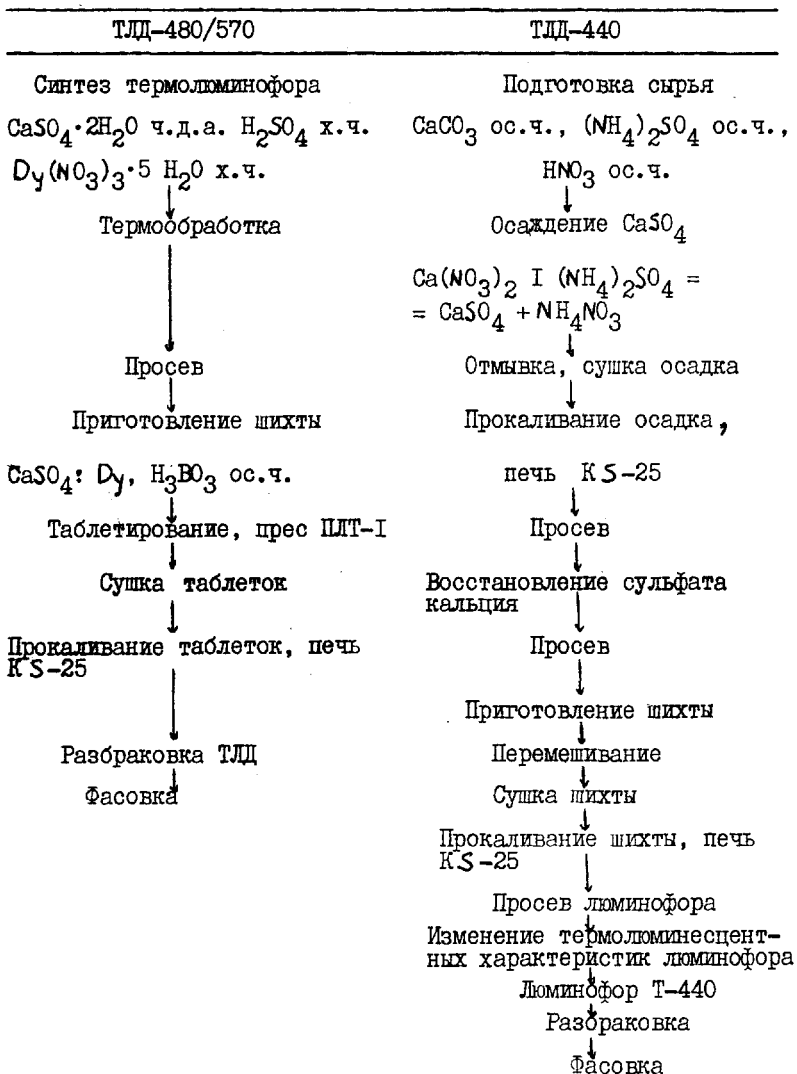
Химический состав	Наименование	Назначение	Чувствительность по отношению к TLD-100 (СПА), отн. ед.
$\text{LiF} : \text{Mg, Ti}$	ТЛД-40	Индивидуальная дозиметрия γ -излучения	2,2
$\text{LiF} : \text{Mg, Ti}$	ТЛД(Г-С)	То же	0,67
$\text{LiF} : \text{Mg, Ti}$	ТЛД(И)	-	1,5
$\text{MgB}_4\text{O}_7 : \text{Dy}$	ТЛД-580	-	15
$\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$	T-480/570	Дозиметрия окружающей среды по γ -излучению	~60
$\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$	T-480/570(Б)	То же	30
$\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$	ТЛД-480/570	"-"	30
CaS активир.	ТЛД-440	Дозиметрия быстрых нейтронов и γ -излучений	-

Таблица 3
Основные термолуминесцентные характеристики
ТЛД-580 [7] и ТЛД-580-I
The basic TL characteristics
of TLD-580 [7] and TLD-580-I
Table III

Наименование показателей	ТЛД-580	ТЛД-580-I
Чувствительность детекторов, отн. ед.	1,0	1,7
Механическая прочность, кг	1,0	9,0
Разброс чувствительности детекторов, %	+33	+18
Летучесть материалов детекторов, %	20	не отмечается
Потеря информации (феддинг) за квартал, %	35	25

Схема 3
Scheme 3

Получение ТЛД на основе сульфата и сульфида кальция
Production of CaS- and CaSO₄-based



Основные дозиметрические характеристики:

- собственный фон - 0,2-0,3 мрад;
- минимальная измеряемая доза - излучения - 1 мрад;
- заметное влияние рассеяного света отсутствует;
- сходимость на уровне $\pm 5\%$;
- негигроскопичен.

На схеме 3 приведена принципиальная технология получения термолуминофора на основе сульфида кальция (ТЛД-440) для регистрации нейтронов [9].

Схема предполагает получение сульфата кальция высокой чистоты, высокотемпературное прокаливание, глубокое восстановление сульфата до сульфида, в отличие от ранее разработанных схем восстановление осуществляется глубже и дальше. Основные характеристики детекторов:

- нейтрон - γ -отношение - 1;
- сходимость показаний $\pm 5\%$;
- фединг 35% за 7 дней.

Таким образом, на основании вышеизложенного можно сделать вывод, что в настоящее время для индивидуальной дозиметрии гамма- рентгеновского излучения разработаны и находятся на стадии внедрения в промышленность детекторы на основе бората магния (ТЛД-580-1) и фторида лития (ТЛД-400), по своим характеристикам не уступающие лучшим зарубежным образцам.

Ведутся работы по детекторам для дозиметрии окружающей среды и быстрых нейтронов для дозиметрии смешанного гамма-нейтронного излучения. Завершение этих работ позволит создать комплект дозиметров для дозиметрии окружающей среды и индивидуальной дозиметрии гамма-, рентгеновского и нейтронного излучений.

Литература

- I. Daniels F., Boyd C.A., Saunders D.F. Thermoluminescence as a Research Tool. - Science, 1953, vol. 117, p. 343.

2. Антонов-Романовский В.В., Кеирим-Маркус И.Б., Порошина М.С., Трапезникова Э.А. Дозиметрия радиоактивных излучений с помощью вспышечных фосфоров. - Сессия АН СССР по мирному использованию атомной энергии. М.: АН СССР, 1955, с. 342.
3. Кронгауз В.Г. Люминесценция и неорганические люминофоры (области применения). Люминофоры для термоллюминесцентной дозиметрии: Обзор. инф. - М.: НИИГЭХИМ, 1978, (Сер. Люминофоры и особо чистые вещества). - 35 с.
4. Pradhau A.S. Thermoluminescence dosimetry and its applications. - Rad. Prot. Dosimetry, 1981, vol. 1, N 3, p. 153-167.
5. Косинцев Ф.И. Достижения и задачи отечественной промышленности люминофоров. - ЖПС, 1982, т. 36, вып. 5, с. 733-738.
6. Кузьмин Ю.И., Гаркуша В.А., Голота А.Ф., Лукьянченко Н.И. Исследование физико-химических особенностей твердофазного синтеза термоллюминофора на основе фторида лития. - Тез. докл. на Всесоюз. совещ. "Синтез, свойства, исследования и технология люминофоров для отображения информации", 21-23 октября 1982 г. Ставрополь, 1982, с. 85.
7. Кузьмин Ю.И., Ишкова Т.В., Голота А.Ф., Гаркуша В.А. Влияние исходного сырья на термоллюминесцентные характеристики фторида лития. - Там же, с. 88.
8. Семенов А.В., Федин В.Ф., Капленов И.Г., Бендерский Л.А. Особенности получения детекторов из бората магния. - Материалы III Всесоюз. симпозиума по люминесцентным приемникам и преобразователям рентгеновского излучения. Ставрополь, 1980, с. 118.
9. Гаркуша В.А. Развитие исследований и производства рентгено- и термоллюминофоров. - В кн.: Синтез и технология люминесцентных материалов. Ставрополь, 1983, вып. 24, с. 52-59 (Труды ВНИИ люминофоров).

STUDY AND DEVELOPMENT OF TL PHOSPHORS
FOR TL DETECTORS

F.I. Kosintsev, V.A. Garkusha,
Yu.I. Kuzmin

S u m m a r y

The quality of home-made TL phosphors is not inferior to foreign ones and in some respects they even surpass the latter. The developed technology schemes exclude labour-consuming operations.

ВЛИЯНИЕ РАЗЛИЧНЫХ ФАКТОРОВ НА ТОЧНОСТЬ ИЗМЕРЕНИЯ
ДОЗЫ ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫМИ ДОЗИМЕТРАМИ
С ДЕТЕКТОРАМИ ИЗ ФТОРИСТОГО ЛИТИЯ

В.И. Коваленко, О.В. Лебедев, И.Х. Шавер

Исследовано влияние на показания термолюминесцентного дозиметра энергетической и угловой зависимости, режима термообработки, фединга, времени хранения необлученного дозиметра, видимого света и собственного фона детектора. Рассмотрены методы оптимальной коррекции энергетической зависимости.

Основным источником ошибок в дозиметрии фотонного излучения с энергией ниже 100 кэВ являются энергетическая и угловая зависимости дозиметра. Экспериментально измеренная энергетическая зависимость (ЭЗ) для детекторов ϕ 5x1 мм из LiF в тонкой полиэтиленовой оболочке, в кассете из полистирола толщиной 1,6 мм без фильтра, а также с фильтрами из 1 и 2 мм Al показана на рис. 1. Она достигает наибольшей величины (около 1,3) для детектора в полиэтиленовой упаковке при энергии 30 кэВ. Такая значительная ЭЗ не может быть эффективно скорректирована во всем диапазоне энергий, поэтому целесообразно выбирать оптимальный метод коррекции в зависимости от условий применения дозиметра.

В широком энергетическом диапазоне наиболее просто коррекция осуществляется, как это видно из рис. 1, применением фильтра из 1 мм Al, позволяющего снизить погрешность, обусловленную ЭЗ, в диапазоне 28 ... 1300 кэВ до $\pm 15\%$ или применением фильтра из 2 мм Al, обеспечивающего погрешность до $\pm 8\%$ для энергий от 36 до 1300 кэВ. Коррекция ЭЗ достигается здесь ценой ограничения энергетического диапазона дозиметра

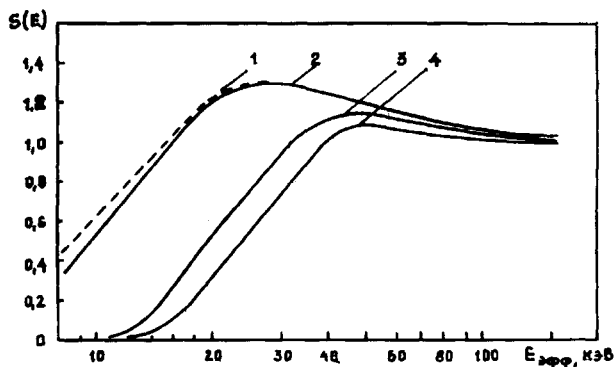


Рис. 1. Энергетическая зависимость дозиметра:

- 1 - в тонкой полиэтиленовой оболочке,
- 2 - в пластмассовом корпусе без фильтра,
- 3 - в корпусе с фильтром из 1 мм Al ,
- 4 - в корпусе с фильтром из 2 мм Al .

Fig. 1. Energy response of a dosimeter:

- 1 - in polyethylene foil shell,
- 2 - in plastic case, no filtration,
- 3 - in plastic case, filter 1 mm Al ,
- 4 - in plastic case, filter 2 mm Al .

со стороны низких энергий.

Для дальнейшего существенного снижения ЭЗ в широком диапазоне энергий следует, как показано нами [1], применять дозиметр с двумя детекторами, перед одним из которых установлен фильтр из 1 мм Al . Коррекция заключается во введении поправки, определяемой из отношения показаний детектора под фильтром и детектора без фильтра.

Экспериментальная проверка этого метода при сличении ТЛД СССР и ВНР показала, что в смешанных полях фотонного излучения с энергиями компонент от 15 до 1250 кэВ ошибка определения суммарной дозы не превышает 7% для половины результатов измерений и 14% - для 95% измерений, что почти вдвое ниже, чем погрешность однодетекторного дозиметра с фильтром из 1 мм Al [1].

На практике, однако, не часто требуется измерять одним и тем же дозиметром дозу излучения в таком широком диапазоне энергий. Типичны три энергетических интервала: 1) 15 ... 100 кэВ - диапазон рентгеновского излучения; 2) 25 ... 50 кэВ - наиболее актуальный диапазон эффективных энергий рентгеновских аппаратов и 3) 100 ... 1300 кэВ - прямое и рассеянное гамма-излучение. Это позволяет решать задачу коррекции ЭЗ оптимально в каждом интервале энергий.

В диапазоне 100 ... 1300 кэВ ЭЗ можно пренебречь, если в корпус дозиметра установлен фильтр из алюминия толщиной не менее 1 мм, обеспечивающий удовлетворительные условия электронного равновесия.

Для дозиметрии излучения с энергией от 15 до 100 кэВ следует пользоваться дозиметром без фильтра, желательно с толщиной передней пластмассовой стенки не более 1 мм и делить результат измерения дозы на 1,15 - среднее значение ЭЗ в данном диапазоне (см. рис. 1). В этом случае погрешность за счет ЭЗ не превышает $\pm 15\%$. Следует заметить, что применение тонкой полиэтиленовой упаковки вместо корпуса дозиметра для снижения ЭЗ, как это видно из рис. 1, малоэффективно, а для энергий выше 25 кэВ - нецелесообразно.

В диапазоне 25 ... 50 кэВ ЭЗ дозиметра без фильтра практически постоянна ($1,23 \pm 0,04$) и ее можно скорректировать делением измеренной дозы на этот коэффициент. Анализ ЭЗ дозиметра для моноэнергетического излучения, выполненный нами с использованием спектров рентгеновского излучения 2, 3, показал, что в диапазонах 10 ... 25 кэВ и 45 ... 95 кэВ ЭЗ для моноэнергетического и фильтрованного излучения с той же эффективной энергией различаются не более, чем на 3%, а в диапазоне 25 ... 45 кэВ - не более, чем на 6%. Поэтому графиком ЭЗ (рис. 1) можно пользоваться при любой степени энергетической однородности рентгеновского излучения.

Угловая зависимость дозиметра начинает проявляться при энергиях ниже 50 ... 70 кэВ и ее величина определяется не только энергией излучения, но также размерами и формой фильтра и конструкцией корпуса дозиметра. Поэтому для корректного учета угловой зависимости следует определить ее экспериментально. Типичный характер этой зависимости для

корпуса без фильтра, а также с фильтром из 1 мм Al показан соответственно на рис. 2а и 2б. Увеличение чувствительности в диапазоне углов $60^\circ \dots 90^\circ$ объясняется тем, что часть излучения достигает детектора, минуя фильтр.

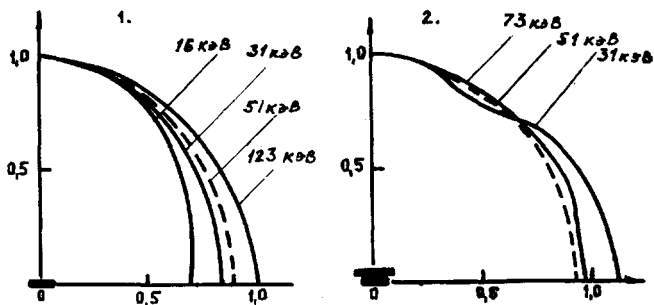


Рис. 2. Угловая зависимость дозиметра в полистироловом корпусе: 1 - без фильтра, 2 - с фильтром из 1 мм Al .

Fig. 2. Angle response of a dosimeter in polystyrene case:

- 1 - no filtration,
- 2 - filter 1 mm Al .

Третьим по величине источником погрешностей является влияние фединга и отклонений от режима термообработки. Было установлено, что при термообработке по Камерону ($400^\circ C$, 1 час; $80^\circ C$, 17 часов) фединг детекторов ЭЧ ТЛД 0-05 за 3 месяца хранения при комнатной температуре после облучения составляет $6 \pm 2\%$, причем основная потеря информации происходит в течение первых 10 ... 15 дней после облучения. Дополнительная термообработка ($100^\circ C$, 5 ... 10 минут) перед измерением снижает фединг за 3 месяца до $3 \pm 2\%$. С повышением температуры до 60° фединг ЭЧ ТЛД 0-05 и ДТТ-4 возрастают до 15% за 15 дней. Термообработка перед измерением в течение 5 часов при $100^\circ C$ или 17 часов при $80^\circ C$ снижает эту величину фединга до 5 ... 7%. Более удобна дополнительная термообработка при $80^\circ C$, т.к. можно пользоваться тем же термостатом.

Исследования показали, что при термообработке детекторов

отклонение от температуры 400°C на $\pm 10^{\circ}\text{C}$ или от температуры 80°C на $\pm 1^{\circ}\text{C}$ не изменяет чувствительности в пределах ошибки измерений ($\pm 1\%$). В диапазоне скоростей охлаждения детекторов $0,5 \dots 2^{\circ}\text{C}/\text{сек}$ увеличение скорости охлаждения от 400°C на 10% вызывало повышение чувствительности детекторов до 3% из-за возрастания вклада низкотемпературных пиков в светосумму.

После 50 циклов термообработки по Камерону чувствительность детекторов снижается на $7 \pm 3\%$. При отжиге в приборе струей азота с температурой 340°C в течение 14 секунд наблюдалось увеличение чувствительности ЭЧ ТЛД 0-05 за 100 циклов отжига на $8 \pm 3\%$, по-видимому, за счет неполного высвечивания высокотемпературных пиков 6 и 7.

Изучение влияния интервала времени между отжигом детекторов и облучением на их чувствительность показало, что за 24 часа хранения при комнатной температуре после термообработки чувствительность изменяется не более, чем на $\pm 2\%$, а через три месяца она уменьшалась на $5 \pm 3\%$.

Влияние света выражается в увеличении фона детекторов за счет термолуминесценции, подобной радиационно-индуцированной, и уменьшения радиационно-индуцированной термолуминесценции путем освобождения светом захваченных носителей. При небольших экспозициях светом у $\bar{}$ выражены пики при 90 , 110 и 150°C , а с повышением экспозиции - и при 220°C . По сравнению с контрольной группой, хранившейся в темноте, у детекторов, находившихся в течение 5 часов при освещенности 200 люкс от люминесцентных ламп, фединг увеличивался на $4 \pm 2\%$, а от ламп накаливания - не более чем на 2% . При тех же условиях освещения фон детекторов возрос не более, чем на 10^6 мкГр.

Погрешность измерения доз менее 1 мГр в значительной степени зависит от величины собственного фона детектора и его сходимости. Фон детектора определяется составом газа, в котором происходит высвечивание, площадью, состоянием и загрязнением поверхности детектора, его кристаллической структурой, температурно-временным режимом измерения и применяемым светофильтром. При нагревании детекторов в струе особо чистого азота с температурой 340°C в течение 15 секунд среднее значение собственного фона составило: ТЛД-400 - 180 мкГр,

ЭЧ ТЛД 0-05 - 80 мкГр; ДТГ-4 - 46 мкГр. Наблюдаемое различие фона в данном случае обусловлено в основном влиянием поверхности детекторов, представляющих соответственно спрессованные из порошка, поликристаллические и монокристаллические образцы. Распределение значений собственного фона 700 штук ЭЧ ТЛД 0-05, произвольно выбранных из 14 разных партий, оказалось близким к логнормальному. Для 95% ЭЧ ТЛД-0-05 собственный фон находился в пределах от 50 до 120 мкГр. С учетом этого разброса фона определяется необходимость сортировки детекторов по фону при измерении малых доз.

Применение изложенных здесь результатов исследований в практике термолуминесцентной дозиметрии позволило существенно повысить точность измерений дозы и сократить объем выборки при определении средних доз облучения.

Литература

1. Коваленко В.И., Лебедев О.В., Бойтор И., Тек Д. Термолуминесцентная дозиметрия в смешанных полях фотонного излучения. - Тезисы докладов У Всесоюзн. симп. по люминесцентным приемникам и преобразователям ионизирующего излучения. Таллин, 1985, с. 84.
2. Computer program for organ doses in diagnostic radiology. - Rockville: Bureau of Radiological Health, 1978.
3. Storm E., Lier D. X-ray spectral distribution in roentgens. - Health Phys., 1972, vol. 23, N 1, p. 73-84.

THE INFLUENCE OF DIFFERENT FACTORS ON THE DOSE
MEASUREMENT ERRORS BY THE USE OF LiF TLD

V.I. Kovalenko, O.V. Lebedev, I.H. Shaver

S u m m a r y

The influence of apparatus and environmental factors on the indication of TLD has been investigated. Optimal methods for correcting the energetic dependence of the dosimeter are proposed. The dependence of the fading rate on temperature and the mode of additional thermal treatment has been studied. It has been ascertained that on thermal treatment by the Cameron method, temperature deviations from 400°C to $\pm 10^{\circ}\text{C}$, from 80°C to $\pm 1..2^{\circ}\text{C}$ and the deviations of cooling rate by 5...10 % are allowed. Artificial light sources are shown to have negligible influence on the fading and background of TLD during 5 hours. Background characteristics of various LiF-based dosimeters are examined.

СРЕДСТВО ИЗМЕРЕНИЙ ПОВЫШЕННОЙ ТОЧНОСТИ
НА ОСНОВЕ МОНОКРИСТАЛЛОВ ФТОРИСТОГО ЛИТИЯ

Л.Л. Сяниников, А.И. Непомнящих, С.Н. Мироненко,
Ю.Н. Тарасенко, И.И. Соловьев

Приводятся результаты исследования метрологических характеристик монокристаллических детекторов ДТТ-4 на основе LiF:Mg, Ti . Исследовано влияние режимов термообработки на характеристики детекторов. При дозах до 10^3 P специальная термообработка перед использованием детекторов не требуется. Для диапазона $1-10^3 \text{ P}$ оптимальным режимом является отжиг при 400°C с медленным охлаждением в течение 17 часов. Доверительные границы погрешности измерений дозиметрического комплекта в составе измерительного устройства 2800 "Victoreen" и детекторов ДТТ-4 составляют $\pm 3\%$ при $\text{P} = 0,95$.

Термолюминесцентные дозиметры нашли широкое применение при контроле и аттестации аппаратов для лучевой терапии [1]. В мировой практике хорошо зарекомендовала себя централизованная система контроля гамма-терапевтических аппаратов с помощью пересылаемых по почте термолюминесцентных детекторов LiF и рентгенотерапевтических аппаратов, которая осуществляется по совместной программе МАГАТЭ и ВОЗ [2]. Этот способ может успешно использоваться и в метрологии ионизирующих излучений при аттестации поверочных дозиметрических установок. Для его практической реализации необходимы дозиметры с погрешностью $(2+3)\%$. В работе изложены результаты работы по созданию средства измерений экспозиционной дозы в диапазоне $(1-10^3) \text{ P}$ с доверительной границей погрешности измерений, не превышающей $\pm 3\%$ при доверительной вероятности 0,95 для аттестации поверочных установок с изотопными источниками ^{137}Cs и ^{60}Co .

Для исследований были выбраны монокристаллические детекторы ДТТ-4 на основе LiF:Mg, Ti , которые благодаря малой поверхности взаимодействия с окружающей средой и высокой про-

зрачности обладают очевидными преимуществами перед порошковыми и таблетированными: малым фоновым сигналом, хорошим светосбором со всего объема детектора и др. Широкому распространению монокристаллических детекторов препятствовали большие трудности, связанные с получением однородных по термолюминесцентным свойствам крупных монокристаллов. Разработанный в Институте геохимии им. А.П. Виноградова СО АН СССР метод выращивания монокристаллов позволил решить эту проблему и получить монокристаллические детекторы ДТГ-4 в требуемом количестве [3].

Измерение термолюминесценции проводилось на измерительном устройстве модели 2800 "Victoreen".

Доза излучения определялась по формуле:

$$D = \frac{\Phi - B}{S} \prod_{i=1}^n k_i \quad (1)$$

где Φ - показания измерительного устройства, имп.;

B - фон необлученного детектора и нагревателя, имп.;

k_i - поправочные коэффициенты, исключающие систематические погрешности.

Для диапазона $(1 \pm 10^3) R$ величина B мала по сравнению с полезным сигналом и ее можно пренебречь.

В общем случае погрешность измерения дозы определяется случайной погрешностью дозиметра, вызванной нестабильностью измерительного устройства, отличиями в режимах отжига и считывания при последующих измерениях, погрешностью определения чувствительности при калибровке детекторов и др., а также неисключенными остатками систематических погрешностей, обусловленных федингом $\delta_{кт}$ нелинейностью градуировочной характеристики и др., которые представляют собой погрешности определения поправочных коэффициентов K_i .

Доверительные границы погрешности измерений определяются по формуле:

$$\delta D = \frac{t_{m-1}^{0.95} S_{cl} m^{-\frac{1}{2}} + \theta}{S_{cl} + S_{\theta}} \sqrt{S_{cl}^2 + S_{\theta}^2} \quad (2)$$

- где $t_{m-1}^{0,95}$ - коэффициент Стьюдента при доверительной вероятности 0,95;
- $S_{\text{сЛ}}$ - среднее квадратическое отклонение случайной погрешности;
- θ - оценка суммы неисключенных остатков систематических погрешностей;
- S_{θ} - среднее квадратическое отклонение суммы неисключенных остатков систематических погрешностей;
- m - количество наблюдений или количество детекторов, облучавшихся в одной точке.

$$\theta = 1,1 \left[(\delta_s)^2 + (\delta_{\text{кЕ}})^2 + (\delta_{\text{кТ}})^2 + (\delta_{\text{кФ}})^2 + (\delta_{\text{кЕ}})^2 + (\delta_{\text{кР}})^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (3)$$

- где δ_s - погрешность определения чувствительности;
- $\delta_{\text{кЕ}}$ - погрешность, связанная с энергетической зависимостью чувствительности детектора;
- $\delta_{\text{кТ}}$ - погрешность, связанная с федингом;
- $\delta_{\text{кФ}}$ - погрешность, связанная с анизотропией;
- $\delta_{\text{кЕ}}$ - погрешность, связанная с чувствительностью к свету;
- $\delta_{\text{кР}}$ - погрешность определения поправочного коэффициента, учитывающего нелинейность градуировочной характеристики.

$$S_{\theta} = \frac{\theta}{\sqrt{3}} \quad (4)$$

Случайная погрешность обусловлена нестабильностью измерительного устройства и вариациями чувствительности детекторов, которая возникает из-за отклонений в режимах отжига и считывания, а также зависит от свойств детекторов.

Среднее квадратическое отклонение результата наблюдения измерительного устройства, характеризующее его нестабильность, определялось по светосоставу постоянного действия и составило 0,2% за 8 часов работы.

Как известно, характеристики $\text{LiF}:\text{Mg},\text{Ti}$ во многом определяются режимом термообработки перед облучением. Это связано с процессами диффузионного взаимодействия активаторов. Скорость диффузионной агрегации $\text{Mg}^{++}\text{V}_c^{-}$ диполей зависит от концентрации магния [5]. Выбор оптимальной концентрации магния

фтористого в шихте 0,03–0,05 % позволили существенно снизить скорость процесса диффузного взаимодействия активаторов. Однако для определенных условий термообработка для детекторов ДТТ-4 все же необходима. В процессе экспериментальных исследований использовался отжиг при 80°C, высокотемпературный отжиг при 400°C с последующей выдержкой при 80°C, отжиг при 400°C в течение часа с последующим медленным охлаждением в муфельной печи в течение 17 часов, отжиг в измерительном устройстве при 340°C в течение 20 с и охлаждением со скоростью 60 град·с⁻¹. Исследовалось влияние послеоблучательного отжига при 100°C в течение 10 мин. Конкретные результаты приведены по тексту.

Для оценки погрешности, связанной с вариациями чувствительности детекторов, произвольным образом были выбраны 10 детекторов из партии и десять раз проведен цикл "отжиг-облучение-считывание" при дозе излучения 10 Р. По полученным данным рассчитывали коэффициенты вариации чувствительности одного детектора при каждом последующем отжиге \bar{D}_0 средней чувствительности в партии после i -го отжига \bar{D}_i чувствительности j -го детектора после n отжигов \bar{D}_j и средней чувствительности в партии в течение n отжигов \bar{D}_a [4]:

$$\bar{D}_0 = \left[\frac{1}{(m \times n) - 1} \sum_{j=1}^m \sum_{i=1}^n \left(\frac{X_{ji} - X_{j,i+1}}{X_{ji}} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (5)$$

$$= \frac{1}{\bar{X}_{0i}} \left[\frac{\sum_{j=1}^m (\bar{X}_{0i} - X_{ji})^2}{m - 1} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (6)$$

$$= \frac{1}{\bar{X}_{j0}} \left[\frac{\sum_{i=1}^n (\bar{X}_{j0} - X_{ji})^2}{n - 1} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (7)$$

$$= \frac{1}{\bar{X}_{..}} \left[\frac{\sum_{i=1}^n (\bar{X}_{..} - \bar{X}_{0i})^2}{n - 1} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (8)$$

где X_{ji} - чувствительность j -го детектора после i -го отжига

$j = 1, 2, \dots, m$ - номер детектора;

$i = 1, 2, \dots, n$ - порядковый номер отжига.

В зависимости от выбранной методики калибровки детекторов величина $S_{сЛ}$ будет разной. Если чувствительность определяется для каждого детектора перед его очередным использованием, то $S_{сЛ} = \bar{V}_D$.

Если средняя чувствительность в партии определяется как средняя величина для всех детекторов и затем используется для любого детектора при всех последующих отжигах, то $S_{сЛ} = (\bar{V}_{0i}^2 + 2\bar{V}_{0i}^2)^{1/2}$. При использовании индивидуальной чувствительности каждого детектора, определенной по серии испытаний, среднее квадратическое отклонение случайной погрешности определяется вариациями чувствительности вокруг среднего значения по всем проведенным отжигам:

$$S_{сЛ}^3 = \sqrt{2} \bar{V}_{j0}$$

В случае, если средняя величина чувствительности определяется по выборке из N детекторов и применяется ко всем детекторам, то

$$S_{сЛ}^4 = (\bar{V}_{0i}^2 + \frac{\bar{V}_{0i}^2}{N})^{1/2}$$

Значения $S_{сЛ}$ для детекторов ДТГ-4 при разных режимах термообработки приведены в табл. I.

Большие значения погрешностей $S_{сЛ}^2$ и $S_{сЛ}^4$ определяются неоднородностью использованной партии и могут быть снижены. Однако очевидно, что для получения низкой погрешности необходимо использовать индивидуальную калибровку детекторов.

Погрешность определения чувствительности δ_s оценивалась в соответствии с [6] и составила 1,8%. Детекторы калибровались в кассетах ДТГ-03 из ТЛД-комплекта КДТ-02.

Погрешности, связанные с энергетической зависимостью $\delta_{кЕ}$ и анизотропией $\delta_{кФ}$ чувствительности детектора при аттестации поверочных установок, будут отсутствовать, так как калибровка детекторов проводится в тех же условиях, в которых они будут использоваться.

Таблица I

Случайные погрешности детекторов ДТТ-4

Random errors of detectors DTP-4

№ п/п	Формула для расчета $S_{сл}^i$	$S_{сл. \%}$				
		400°C - 1 ч 80°C - 20 ч 100°C - 10 МИН	400°C - 1 ч 80°C - 20 ч	400°C - 1 ч остывание в печи за 17 ч 100°C - 10 МИН	400°C - 1 ч остывание в печи за 17 ч	340°C - 20 с осты- вание со скоростью 60 град·с ⁻¹
1.	$S_{сл}^1 = \nu_D$	0,15	0,84	0,12	0,26	0,18
2.	$S_{сл}^2 = [\bar{\nu}_{oi}^2 + 2 \nu_a^2]^{\frac{1}{2}}$	7,0	7,6	5,3	7,2	6,5
3.	$S_{сл}^3 = \sqrt{2} \bar{\nu}_{j_0}$	1,0	1,1	0,7	1,1	1,0
4.	$S_{сл}^4 = [\bar{\nu}_{oi}^2 + \frac{\nu_{oi}}{N}]^{\frac{1}{2}}$	7,5	7,9	5,5	7,5	7,0

Экспериментальные исследования показали, что чувствительность детекторов ДТГ-4 восстанавливается после стандартного режима считывания и остается постоянной в течение 30 суток. Следовательно, для этих детекторов не нужен низкотемпературный отжиг для восстановления чувствительности. Однако их использование без дополнительного отжига возможно только при дозах менее 10 Р. При больших значениях дозы недостаточно стандартного режима считывания для полного опустошения центров захвата.

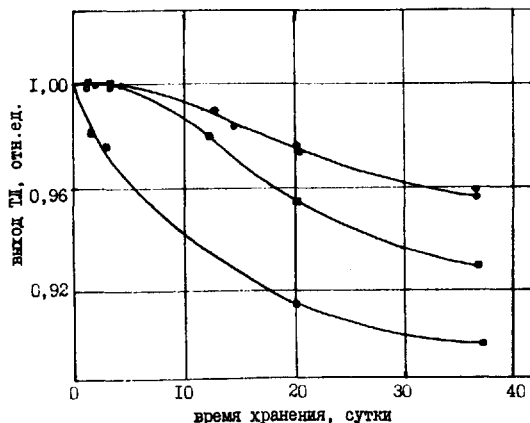


Рис. 1. Изменение выхода ТЛ в зависимости от времени хранения 20°C для разных режимов термообработки.
 ● - 400°C (1 ч) - охл. в печи + 100°C (10 мин),
 ○ - 400°C (1 ч) - охл. в печи,
 ■ - отжиг в из. устройстве + 100°C (10 мин),
 □ - отжиг в изм. устройстве.

Fig. 1. The change of the detector TL output as a function of storage time at 20°C for various modes of thermal treatment
 ● - 400°C (1 h) - cooling in a furnace + 100°C (10 min),
 ○ - 400°C (1 h) - cooling in an oven,
 ■ - detector afterglow + 100°C (10 min),
 □ - detector afterglow.

Высокотемпературный отжиг производился в муфельной печи при температуре 400°C . Продолжительность отжига в интервале от 15 мин до 1 часа не влияет на чувствительность детекторов, но для полного опустошения центров захвата после дозы 10^3P продолжительность отжига должна быть не менее 1 часа.

Существенное влияние на чувствительность оказывает скорость охлаждения детекторов. В диапазоне $(10+60)$ град $\cdot\text{c}^{-1}$ чувствительность остается постоянной, а при 10^{-2} град $\cdot\text{c}^{-1}$ уменьшается в два раза по сравнению со скоростью охлаждения 60 град $\cdot\text{c}^{-1}$.

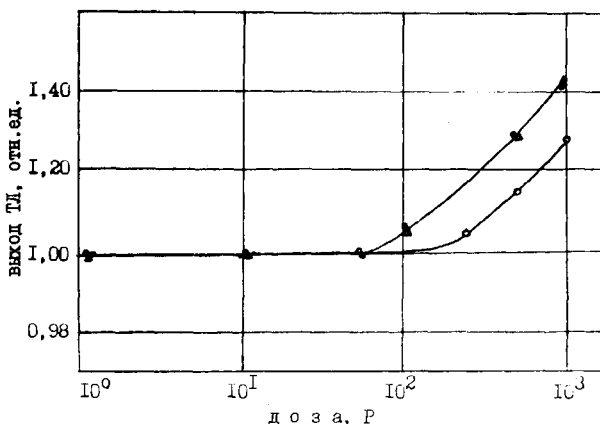


Рис. 2. Зависимость запасаемой светосуммы ТЛ от дозы излучения для разных режимов термообработки
 ● - 400°C (1 ч) - 80°C (20 ч),
 ▲ - 400°C (1 ч) - охл. в печи,
 ○ - отжиг в изм. устройстве.

Fig. 2. The stored TL lightsum as a function of irradiation dose in various modes of thermal treatment
 ● - 400°C (1 h) - 80°C (20 h),
 ▲ - 400°C (1 h) - cooling in a furnace,
 ○ - detector afterglow.

На рис. 1 показаны зависимости запасенной светосуммы от времени хранения детекторов после облучения, а на рис. 2 — зависимости запасаемой светосуммы от дозы излучения для разных режимов отжига.

Полученные результаты позволили определить оптимальный режим термообработки для монокристаллических детекторов ДТТ-4. Он заключается в высокотемпературном отжиге при 400°C в течение 1 часа и медленном охлаждении до комнатной температуры за 17 часов. Перед снятием показаний используется предварительный отжиг при 100°C в течение 10 мин. При использовании этого режима термообработки доверительная граница погрешности измерений ТЛД-комплекта в составе измерительного устройства модели 2800 и монокристаллических детекторов ДТТ-4, оцененная по формуле (2), не превышает $\pm 3\%$ при доверительной вероятности 0,95 в диапазоне $(1+10^3)$ Р. При этом результат измерения определяется по показаниям трех детекторов. Систематические погрешности, обусловленные федингом и нелинейностью градуировочной характеристики, исключаются введением соответствующих поправочных коэффициентов на основании зависимостей, приведенных на рис. 1 и 2.

Литература

1. Калмыков Л.З., Гринберг С.М., Кандель Т.Г., Шапиро Л.С. Люминесцентная дозиметрия в медицине. Рига, 1983, с. 94.
2. Reports Series 182. International Atomic Energy Agency. Vienna, 1978.
3. Непомнящих А.И., Мироненко С.Н., Афонин Г.П. Авт.свид. № 969026 от 22.06.82.
4. Charles M.W., Macfarlane B.J. The measurement of depth dose and its use in personal dosimeter evaluation and design. In: Proc. 4th Int. Conf. Luminescence Dosimetry. Krakow, 1974, vol. 3.

5. Непомнящих А.И., Раджабов Е.А. Особенности кинетики предварительного изотермического отжига пиков термостимулированной люминесценции в кристаллах LiF:Mg . - Тезисы докладов III Всесоюзного симпозиума по люминесцентным приемникам и преобразователям рентгеновского излучения. Ставрополь, 1979, с. 79-80.
6. Фоминих В.И., Оборин А.В., Губатова Д.Я., Гребенщиков В.Л. Люминесцентная дозиметрия в медицине. Рига, 1983, с. 19.

A LiF-MONOCRYSTAL-BASED DEVICE FOR THE MEASUREMENT
WITH ENHANCED PRECISION

L.L. Sinnikov, A.I. Nepomnyashchikh, S.N. Mironenko,
Y.N. Tarasenko, J.J. Solov'ev

S u m m a r y

Monocrystal detectors DTP-4 based on LiF: Mg, Ti were used for measuring the gamma-radiation dose. By using a 400°C heat treatment within an hour with a subsequent low cooling during 17 hours, individual calibration of detectors and a TLD-reader Victoreen model 2800, uncertainty $\pm 3\%$ was achieved for $P = 0.95$ in $(1 - 10^3) P$ region.

ВЛИЯНИЕ УСЛОВИЙ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ТЛД $\text{CaF}_2\text{-Mn}$ НА ЕГО ХАРАКТЕРИСТИКИ

Ю.С. Скробут, А.С. Корчагин, М.-Л.Ю. Аллсалу,
Э.Ю. Педак, И.Р. Рийв, А.А. Ратас, А.Л. Луст, М.А. Муст

Исследовано влияние действия света и нагрева детекторов $\text{CaF}_2\text{-Mn}$ при облучении и после термоотжига на их чувствительность. При освещении необлученных детекторов с длиной волны 180–600 нм запасание светосуммы не обнаружено. Световой фединг зависит от дозы облучения и от длины волны падающего света и уменьшается при увеличении дозы или $\lambda_{\text{осв}}$. Чувствительность детекторов при их хранении при комнатной температуре не зависит от влажности воздуха.

В практике дозиметрии полей высокоинтенсивного фотонного излучения импульсных ускорителей широкое применение нашли детекторы на основе фторида кальция [1]. Детекторы, разработанные нами [2], имеют на КТВ один ярко выраженный пик при 260°С. Вклад низкотемпературных пиков (ниже 150°С) < 5% от общей светосуммы. Диапазон измеряемых доз 3–10⁵ Р.

С целью выяснения надежности работы синтезированных детекторов исследовалось влияние условий использования на характеристики детекторов. Выяснилось, что в первых циклах (облучение–снятие информации–термоотжиг) происходит некоторый спад световыходов. Поэтому до использования для стабилизации детекторов необходимо подвергать их прокаливанию на воздухе при 400°С в течение 8–10 часов (последний этап в технологии изготовления). Никакой дополнительной стабилизации в процессе применения детекторы не требуют. Влияние многократных циклов на световыход стабилизированных детекторов приведено на рис. 1. Стандартное отклонение от среднего значения световыхода в опытах на воспроизводимость показаний каждого детектора для дозы 10² Р 4 составляет 5%, для дозы 10⁵ Р 5–6%. Стандартное отклонение от среднего значения све-

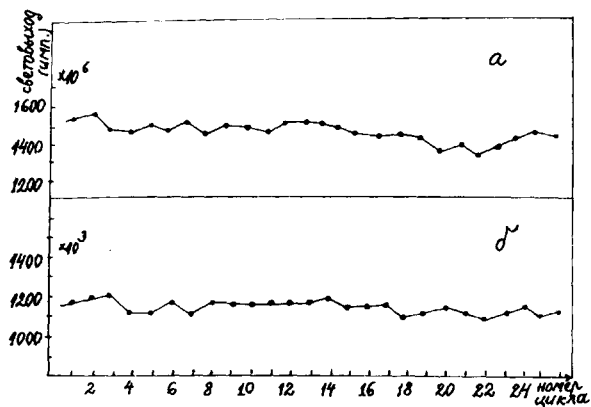


Рис. 1. Влияние многократного облучения на световой выход детекторов $\text{CaF}_2\text{-Mn}$; а - $D_{\mu} = 10^2 \text{ P}$, - $D_{\mu} = 10^5 \text{ P}$.

Fig. 1. Influence of multiple irradiation on thermoluminescence output of $\text{CaF}_2\text{-Mn}$ detectors; а - $D_{\mu} = 10^2 \text{ P}$; б - $D_{\mu} = 10^5 \text{ P}$.

товывхода в опытах на сходимость показаний в одной партии для дозы 10^2 P 3-4%, для дозы 10^5 P 4-5%.

При исследовании влияния света при освещении необлученных детекторов с длиной волны 180-600 нм запасание светосуммы не обнаружено. Результаты исследований влияния освещения облученных детекторов на интенсивность термолумinesцентного сигнала представлены на рис. 2. Как следует из приведенных данных, характер действия света на изменение интенсивности ТЛ сигнала одинаков для всего диапазона доз облучения ($10^2\text{-}10^7 \text{ P}$) и определяется в основном длиной волны светового потока. Действие светом $> 546 \text{ нм}$ не вызывает заметного уменьшения интенсивности ТЛ сигнала. При $\lambda = 436 \text{ нм}$ обнаружено уменьшение ТЛ сигнала (например 5% для дозы 10^7 P). Значительное уменьшение интенсивности наступает после освещения световым потоком с $\lambda = 313 \text{ нм}$. В то же время световой фидинг при равенстве всех других условий ($\lambda_{\text{осв.}}$, $\tau_{\text{осв.}}$

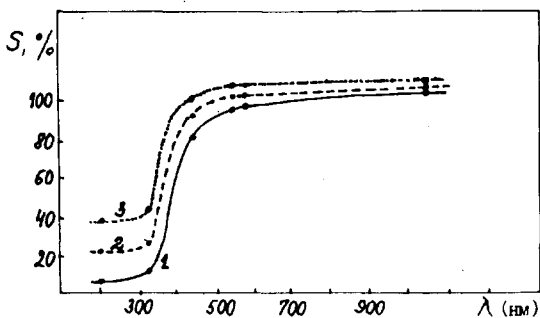


Рис. 2. Влияние длины волны падающего света на потерю светосуммы в детекторы предварительно облучен дозы 1 - 10^2 Р; 2 - 10^5 Р; 3 - 10^7 Р.

Fig. 2. The effect of the incident light wavelength on the TL output in CaF_2 -Mn detectors, previously illuminated by: 1 - 10^2 R; 2 - 10^5 R; 3 - 10^7 R.

$I_{\text{осв.}}$) зависит от дозы предварительного облучения: чем больше экспозиционная доза, тем меньше световой фединг.

При кратковременном воздействии ионизирующего излучения высокой интенсивности на ТЛД ($\tau_{\text{обл.}} = 1-100$ нс) необходимо учитывать повышение температуры детектора в результате радиационного нагрева и влияния этого явления на изменение чувствительности детектора. Проведенные исследования показали, что интенсивность рабочего пика при 260°C не зависит от температуры облучения до 150°C . При дальнейшем повышении температуры интенсивность рабочего пика начинает уменьшаться. Ориентировочный расчет величины предельно-возможного радиационного нагрева детектора при облучении дозой 10^6 Р показал, что температура его при облучении может повышаться на 10-15 градусов, а следовательно, радиационный нагрев не будет оказывать влияния на изменение чувствительности детектора CaF_2 -Mn.

При исследовании влияния окружающей атмосферы на чувствительность при хранении детекторы поставили в эксикатор с

P_2O_5 (сухая атмосфера) или в эксикатор с водой (влажная атмосфера). При комнатной температуре разницы в сохранении светосуммы в сухой или во влажной атмосфере не обнаружено. При хранении при $65^{\circ}C$ влажная атмосфера приводит к увеличению потери информации: после 3 час во влажной атмосфере сохранилось 85%, а в сухой - 95% от первоначальной информации.

Изучение влияния длительности хранения на воздухе при комнатной температуре показало, что фединг после облучения 10^2R и 10 дней не превышает 9%.

Влияния дозы предварительного облучения на чувствительность детекторов, определенной на дозе 10^2R , не обнаружено вплоть до дозы 10^6R .

Литература

1. Gorbics S.G., Attix F.H., Kerris, K. Thermoluminescent dosimeters for high-dose applications. - Health Phys., 1973, vol. 25, p. 499.
2. Бакулин Ю.П., Корчагин А.С., Аллсалу М.-Л.-Ю. и др. Термолуминесцентные детекторы на основе фторида кальция. - Материалы III Всесоюзного симпозиума по люминесцентным приемникам и преобразователям рентгеновского излучения. Ставрополь, 1980, с. 115.
3. Аллсалу М.-Л.-Ю. и др. Способ изготовления термолуминесцентных детекторов в виде таблеток из порошковой смеси. Авт. свид. № 803672, 08.10.1980 г.

INFLUENCE OF APPLICATION CONDITIONS ON THE
CHARACTERISTICS OF TLD $\text{CaF}_2\text{-Mn}$

Yu.S. Skrobut, A.S. Korchagin, M.-L. Allsalu,
E. Pedak, J. Riiv, A. Ratas, A. Lust, M. Must

S u m m a r y

The effect of light, atmospheric content and heating on the TL output of $\text{CaF}_2\text{-Mn}$ detectors has been studied. No TL response has been detected on illuminating non-radiated detectors by a 180-600 nm light. The illumination fading diminishes respectively with the increase of the dose or the illumination wavelength. At room temperature the TL output of detectors does not depend on the moisture of the air.

О ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ СВОЙСТВАХ ДЕТЕКТОРОВ
НА ОСНОВЕ $\text{CaSO}_4\text{-Dy}$, ИЗГОТОВЛЕННЫХ
ПО НОВОЙ МЕТОДИКЕ

М.-Л.Ю. Аллсалу, Л.М. Грехова, М.П. Керикмяз,
М.Т. Орав, Э.Х. Пярноя, А.А. Ратас

Исследованы основные дозиметрические свойства детекторов на основе CaSO_4Dy , изготовленных по новой методике. Найдено, что по чувствительности к γ -излучению и стабильности показаний полученные детекторы превышают детекторы сравнения (содержащие смесь из V_2O_5 , PbO и ZnO). Фединг за два месяца составляет 5-10%.

Благодаря высокой чувствительности к ионизирующим излучениям термолуминофор на основе $\text{CaSO}_4\text{-Dy}$ является перспективным для применения в индивидуальной дозиметрии и в радиационном контроле окружающей среды I, 2. Область применения $\text{CaSO}_4\text{-Dy}$ расширена для определения больших доз γ -излучения (до 10^6 Gy) с измерением термолуминесценции на высокотемпературном пике при 570°C [3]. Сложной технологической проблемой до настоящего времени является изготовление детекторов из люминофора. Одним из наиболее простых методов является прессование таблеток. Однако в случае $\text{CaSO}_4\text{-Dy}$ названный метод дает удовлетворительные результаты лишь с применением специальных добавок - связующих веществ и пресс-порошков. В качестве связующих веществ нашли применение следующие неорганические вещества и смеси: $\text{V}_2\text{O}_5 + \text{PbO} + \text{ZnO}$, NaCl , $\text{Li}_2\text{SO}_4 + \text{Mg}_3(\text{BO}_3)_2$ и LiF [4-6]. Последние добавляются к люминофору в больших количествах (5-70%), что приводит к значительному ухудшению дозиметрических свойств детекторов по сравнению с люминофором (уменьшение интенсивности термолуминесценции, повышение интенсивности низкотемпературных

пиков и т.д.).

Нами разработана методика специальной обработки люминофора, которая позволяет довести концентрации посторонних примесей до 0,5%. С целью выяснения надежности работы разработанных детекторов изучены их основные дозиметрические свойства (чувствительность, стабильность показаний, способность сохранять дозиметрическую информацию). Детекторами сравнения при этом применялись таблетки на основе $\text{CaSO}_4\text{-Dy}$, содержащие смесь из V_2O_3 , PbO и ZnO в количестве 25% (ТУ 40 ЭССР 4-78).

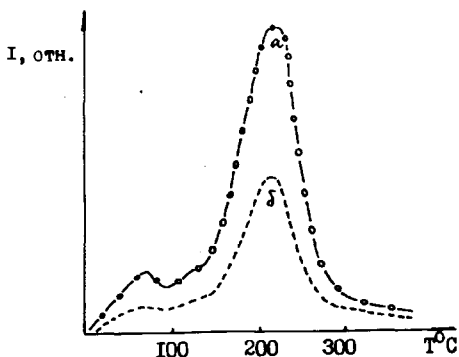


Рис. 1. Кривые термосвечения детекторов на основе $\text{CaSO}_4\text{-Dy}$

а - изготовленных по новой методике,

б - содержащие V_2O_3 , PbO , ZnO ,

† - возбуждение (10R , ^{60}Co): скорость нагрева $2,4^\circ/\text{с}$.

Fig. 1. Glow curves of thermoluminescent detectors $\text{CaSO}_4\text{-Dy}$

a - prepared by the new method,

b - containing V_2O_3 , PbO , ZnO ,

† - excitation (10R , ^{60}Co); heating rate $2,4^\circ/\text{s}$.

Применение новой методики позволяет значительно повысить чувствительность детекторов к β -излучению (рис. 1) и стабильность показаний детекторов при повторных циклах: облучение - измерение - отжиг. Десять циклов (отжиг 400°C , в течение 30 минут) снижают чувствительность детекторов сравнения более чем на 20%. Стабильность названных детекторов улучшается с применением более высокотемпературной термической обработки (600°C , в течение 10 минут). У детекторов, изготовленных по новой методике, спад чувствительности при 10 аналогичных циклах не превышает 5% и более высокотемпературный отжиг не требуется (рис. 2).



Рис. 2. Влияние числа циклов облучение - измерение - отжиг на интенсивность ТЛ детекторов
 а - изготовленных по новой методике, отжиг 30 мин при 400°C ,
 б - содержащие B_2O_3 , PbO и ZnO , отжиг 10 мин при 600°C ,
 в - содержащие B_2O_3 , PbO и ZnO , отжиг 30 мин при 400°C .

Fig. 2. TL response as a function of the number of exposure-reading-heating cycles
 а - new detectors, heating 30 minutes at 400°C ,
 б - detectors containing B_2O_3 , PbO and ZnO ; heating 10 minutes at 600°C ,
 в - detectors containing B_2O_3 , PbO and ZnO ; heating 30 minutes at 400°C .

Изучение фединга в течение двух месяцев показывает, что основная потеря запасенной энергии имеет место в течение первых суток ($\sim 10\%$). Дальнейшее хранение облученных детекторов, независимо от метода изготовления, в течение двух месяцев приводит к потере информации, не превышающей 5–10% (рис.3). Учитывая приведенные выше результаты, в дальнейшем измерения интенсивности термолуминесценции проводились не ранее 24 часов после облучения детекторов.

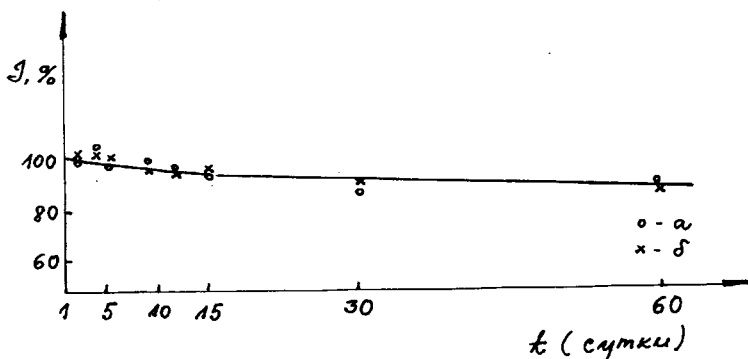


Рис. 3. Фединг детекторов $\text{CaSO}_4\text{-Dy}$, изготовленных по новой методике
 а - хранение и измерение без доступа света,
 б - хранение и измерение в обыкновенных лабораторных условиях (без прямого солнечного света).

Fig. 3. Fading of the TL of $\text{CaSO}_4\text{-Dy}$ detectors prepared by the new method
 a - detectors are stored and read out in darkness,
 b - detectors are stored and read out in ordinary laboratory conditions (without direct sunlight).

Разница между результатами, полученными: а) при хранении детекторов без доступа света и б) в обыкновенных лабораторных условиях при искусственном освещении, остается в пределах ошибки измерения интенсивности термолуминесценции.

Литература

1. Касканов Г.Я., Комочков М.М., Гелев М.Г., Леви С.М., Радичева М.А. Дозиметрические характеристики термолуминесцентных детекторов на основе люминофора $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ смеси. - Сообщ. Объедин. ин-т ядер. исслед. Дубна, 1983, № 16-83-212, 1-9.
2. Christensen, P., Botter-Jensen L., Majborn B. Thermoluminescence dosimetry applied to radiation protection. - Int. J. Appl. Radiat. Isotop., 1982, vol. 33, N 11, p. 1035-1050.
3. Chandra B., Bhatt R.C., Supe S.J. High level β -dosimetry using $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ phosphor with high Dy-concentration. - Int. J. Appl. Radiat. Isot., 1981, N 3, p. 553-558.
4. Казанская В.А., Парфенов В.А. Таблетированные термолуминесцентные детекторы на основе сернокислого кальция. - Вопр. атом. науки и техн., Ядер. приборостр., 1978, № 38, 157-161.
5. Morato S.P., Gordon A.M.P., E.N. Dos Santos, Gomes L., Campos, L.L., Prado L., Vieira M.M.F., Bapat V.N. Development of a solid state dosimeter based on thermoluminescent $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ crystals. - Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., 1982, vol. 200, N 2-3, p. 449-455.
6. Dražič G., Trontely M., Kořar D. Sintranje termoluminescenčega prahu na osnovi CaSO_4 . - In: 1 Jugosl. simp. o keramici. Zb. rad., Beograd, 1981, kn. 2, 595-602.

DOSIMETRIC PROPERTIES OF CaSO_4 -Dy DETECTORS
PREPARED BY A NEW METHOD

M.-L. Allsalu, L.M. Grekhova, M. Kerikmäe,
M. Orav, E. Pärnoja, A. Ratas

S u m m a r y

In this paper, some dosimetric properties of thermoluminescent detectors prepared by a new method are presented. It has been found that f -sensitivity and stability of the TL response of the new detectors are higher than the corresponding values of the detectors containing B_2O_3 , PbO and ZnO . TL response fades by 5-10 % in two months storage at room temperature.

СЛИЧЕНИЕ ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ДОЗИМЕТРИЧЕСКИХ УСТАНОВОК

В.И. Фоминых, С.А. Федина

В статье приводятся результаты сличения термолюминесцентных дозиметрических (ТЛД) комплектов [1], применяемых для измерений в полях гамма-излучения в системах индивидуального дозиметрического контроля (ИДК), при контроле уровня излучения окружающей среды, в медицине для дистанционной лучевой терапии и в радиационной технологии. При проведении сличения идентичность условий облучения ТЛД-дозиметров в поле рабочих эталонов ВНИИМ им. Д.И. Менделеева - источников гамма-излучения, контролировалась с помощью ТЛД-набора "сопровождения". В результате сличения получены отклонения измеренных значений экспозиционной дозы (ЭД) каждым ТЛД-комплексом от образцового значения в диапазоне 0,03-1000 Р.

В НПО ВНИИМ им. Д.И. Менделеева с 1984 г. проводятся круговые сличения ТЛД-комплектов, используемых для дозиметрических измерений у нас в стране, в соответствии с программой работ в области метрологического обеспечения ТЛД-измерений и внедрения метода проверки средств измерений с помощью ТЛД-дозиметров.

В I этапе сличения в области гамма-излучения приняли участие 17 организаций, в том числе несколько АЭС, научно-исследовательские институты, институты Минздрава СССР и Академии наук СССР. Для измерений ЭД гамма-излучения участники сличения использовали различные ТЛД-приборы, установки и дозиметры как отечественного производства, так и зарубежные (табл. 1).

ТЛД-дозиметры, подготовленные участниками сличения, направлялись по почте во ВНИИМ им. Д.И. Менделеева на облучение и затем возвращались назад для измерений. Облучение дозиметров проводилось в 5 точках диапазона ЭД 0,03-1000 Р: порядка 0,03; 0,1; 1; 100; 1000 Р (табл. 2) с использованием

Таблица I
Table 1

ТЛД-комплекты I этапа сличений

TLD systems used at the first
stage of intercomparison

№	Тип ТЛД-установки, прибора	Метод измерения	Тип и материал ТЛ-детектора	Тип кассеты или материал и толщина стенки кассеты
1 :	2 :	3 :	4 :	5 :
I.	ТЕЛДЕ-I	пиковый	ТЕЛДЕ (РМИ), LiF	полистирол, 1 мм
2.	ТЕЛДЕ-6	"-	Монокристаллический LiF (ИГХ СО АН СССР)	полиэтиленовая пленка, 0,1 мм
3.	ИТЛ	"-	"-	"-
4.	ТЕЛДЕ-4	"-	ТЛД (ИФ АН Латв. ССР), LiF	"-
5.	ТЕЛДЕ	"-	ТЕЛДЕ (РМИ), LiF	оргстекло, 1,5 мм
6.	ТЕЛДЕ	"-	ТЛД-400 (ВНИИЛ), LiF ТЛД-580 (ВНИИЛ), MgB ₄ O ₇ ТЛД (Тарт.ГУ), LiF	полиэтиленовая пленка
7.	ТЕЛДЕ	"-	ТЕЛДЕ (РМИ), LiF	"-
8.	Установка на основе прибора ИКС-А	интегральный	Алюмофосфатное стекло ИКС-7 (ИКС-А)	Al-кассета в полиэтилене с Pb фильтрами
9.	ИКС-А	"-	"-	"-
10.	Установка на основе стандартных промышленных блоков	пиковый	ТЛД (ИФ АН Латв. ССР), LiF	оргстекло, 4 мм
11.	"-	"-	ЭЧ ТЛД-5 (ГИИХ), LiF	пластмасса, 1 мм
12.	КДТ-02	интегральный	ТЛД-580 (ВНИИЛ), MgB ₄ O ₇	кассета ДПГ-03

Продолжение табл. I

I :	2	:	3	:	4	:	5
13.	Установка на основе стандартных промышленных блоков	:	интегральный	:	ТЛД-400(ВНИИЛ), кассета ДПС-II LiF ТЛД-580(ВНИИЛ), кассета ДПГ-03 $K_2B_4O_7$:	
14.	КИД-7	:	"-	:	Дозиметры РД-02	:	
15.	"Victoreen" (США) модель 2800	:	"-	:	ТЛ-28 Victoreen, LiF кассета ДПГ-02 ТЛ-13 Victoreen, CaF_2	:	"-
16.	"Пилле" (ВНР)	:	"-	:	ДТТ-4(ИГХ СО АН СССР), LiF ТЛД "Пилле", $CaSO_4 : Tm$:	"-
17.	"ТЛД-04" (ВНР)	:	"-	:	Алюмофосфатное стекло ИС-7	:	стекло, 0,8 мм Al, 1 мм
18.	"Harshow" (США) модель 2000А	:	"-	:	ТЛД-100 Harshow, LiF ТЛД-600 Harshow, LiF ТЛД-700 Harshow, LiF ЭЧ ТЛД-5 (ИГХ), LiF	:	оргстекло, 3 мм "- "- "-
19.	"Harshow" (США) модель 2000Д	:	"-	:	ЭЧ ТЛД-5 (ИГХ), LiF	:	полистирол, 1,6 мм, Al 1 мм
20.	"Toledo" (США) модель 654	:	"-	:	ТЛД-100 Harshow, LiF	:	полиэтиленовая пленка, 0,1 мм

дозиметрических источников гамма-излучения $Co-60$ с $Cs-137$ с мощностью ЭД от 7 мкР/с до 17 мР/с.

Количество детекторов в кассетах на каждую точку дозового диапазона было ограничено и не превышало 9 штук. Кассеты при этом могли быть любыми, в большинстве случаев используемые в организациях-участниках для практических измерений.

В каждой партии ТЛ-дозиметров, предназначенной для облу-

чения по программе сличения, находился дозиметр для измерения фона. Учет фединга ТЛ-детекторов за время пересылки после облучения производился либо по данным технических условий на определенный тип ТЛ-детекторов, либо по данным, полученным участниками до проведения данной работы. Для исключения дополнительных погрешностей, связанных с неточностью воспроизведения условий облучения, с каждой партией дозиметров облучался образцовый ТЛД-набор "сопровождения", принадлежащий ВНИИМ им. Д.И. Менделеева. Таким образом, после каждого цикла облучения можно было проконтролировать отпущенную ЭД гамма-излучения.

После проведения измерений ТЛ-дозиметров участники сличения сообщали во ВНИИМ им. Д.И. Менделеева полученные значения ЭД, усредненные по показаниям ТЛ-детекторов, облученных в одной точке диапазона ЭД, и основную погрешность измерения данным ТЛД-комплексом. В таблице 2 приведены отклонения (δ) средних измеренных значений ЭД от образцовых значений для каждого из пяти диапазонов облучений, рассчитанные по формуле:

$$\delta = \frac{D - D_0}{D_0} \cdot 100\%,$$

где D_0 - образцовое значение ЭД гамма-излучения,
 D_u - среднее измеренное значение ЭД.

Таблица 2

Отклонения средних измеренных значений ЭД от образцовых значений для различных ТЛД-комплектов
 Differences between the mean of the evaluated exposure doses and the specified exposure dose
 for each TLD system

№ ТЛД-комплекта*	Отклонение δ , %				
	D_1 I-50 мР	D_2 50-150 мР	D_3 0,5-10 Р	D_4 50-200 Р	D_5 500-1000 Р
I	2	3	4	5	6
I	+34	+18	+18	+24	+56
2	+10	+18	+13	+18	+72

Продолжение табл. 2

I	2	3	4	5	6
3	-20	- 9	0	-15	-13
4	+20	+ 9	+28	+15	+70
5	-10	+15	- 5	- 7	- 2
6	+23	- 5	-13	-19	+ 9
	-42	-54	-47	-64	-65
	-	-	-40	-28	-21
	-	-	-	-14	-17
	+20	+12	-14	-13	- 4
	-	-25	-34	-33	-39
7	-10	- 4	- 9	+ 7	- 7
8	+52	+11	- 3	- 6	- 6
9	-	-	+14	-19	-20
10	-	-	- 4	- 3	- 1
11	+34	0	-12	- 5	
12	-	+10	+ 1	+ 9	- 3
13	-24	18	+ 4	+10	+53
	-10	+ 4	- 8	+ 6	+23
14	-	-	+17	+ 4	+ 2
15	-10	+ 7	-32	- 3	- 7
	-14	+11	- 1	- 4	- 5
	-20	+ 2	-13	-11	- 8
16	-	+ 8	-	-	
17	-	-	-	-19	- 4
18	-10	- 2	- 8	- 5	-14
	- 7	- 5	- 5	- 1	+35
	- 8	- 4	- 5	+ 3	+25
	- 1	-16	-31	-21	- 8
19	- 1	+ 4	- 3	- 7	+10
20	+ 7	+10	-	+ 1	

* Номера ГЛД-комплектов в графе I соответствуют номерам в таблице I.

Полученные результаты показывают, что для диапазонов ЭД, в которых проводилось сличение, данное отклонение для большинства комплектов не превышает $\pm 20\%$ (табл. 3). В области малых

Таблица 3

Результаты сличения ТЛД-комплектов в области
гамма-излучения

Table 3

The results of the comparison of a TLD systems
in the field of gamma radiation

Диапазон ЭД	Общее количество ТЛД-комп- лектов	Число ТЛД-комплектов % с от- клонением в пределах:				
		$\pm 3\%$	$\pm 5\%$	$\pm 10\%$	$\pm 15\%$	$\pm 20\%$
Д ₁ 1-50 мР	22	9	9	50	55	73
Д ₂ 50-150 мР	25	12	36	60	76	92
Д ₃ 0.5-10 Р	27	19	37	48	70	78
Д ₄ 50-150 Р	30	17	30	53	70	83
Д ₅ 500-1500 Р	28	14	25	50	59	64

доз (менее 50 мР) погрешность измерения увеличивается за счет специфики измерения, обусловленной необходимостью использования атмосферы азота, вкладом хемиллюминесценции в показание детектора. Увеличение погрешности наблюдается и при дозах более 500 Р. что, по-видимому, связано с нелинейной зависимостью чувствительности ТЛ-дозиметров в этой области. Для дозиметрических измерений термоллюминесцентным методом в настоящее время широко используются различные типы ТЛ-дозиметров. На АЭС это, как правило, ТЛД-400 и ТЛД-580, которые входят в комплект установки КДТ-02. Для целей индивидуального дозиметрического контроля на предприятиях, связанных с

производством и использованием радионуклидов, а также в медицинских учреждениях, наиболее распространенными являются ТЛ-детекторы типа ЭЧ ТЛД-05 и типа ТЕЛДФ. На данном этапе вопрос о стандартизации формы и размеров ТЛ-детекторов для широкого применения рассматривался на одном из координационных совещаний по метрологии ТЛД (1980 г.), и в качестве стандартных были приняты образцы с диаметром 5 мм и толщиной 1 мм. Но для кассет до сих пор не решен вопрос о стандартизации их типа, о выборе оптимальной толщины и материала фильтров для конкретного вида излучения.

Среди отечественных ТЛД измерительных приборов наиболее широко используются прибор "ТЕЛДФ" и различные его модификации. В некоторых организациях изготовлены лабораторные установки на основе типовых промышленных блоков. В сличении установки подобного типа показали удовлетворительные результаты. К настоящему времени среди имеющихся ТЛД-комплектов лишь 3 прошли государственные приемочные испытания: прибор ИКС-А в комплекте с дозиметрами ИКС-А на основе алюминофосфатного стекла ИС-7, комплект КДТ-02 с детекторами ТЛД-400 на основе LiF и ТЛД-580 на основе MgB_2O_7 , в кассетах ДПС-II и ДПС-03 соответственно и установка ДТУ-01 в комплекте с ТЛ-детекторами ТЛД-400.

В результате проведенной работы была получена возможность сравнить точности практических измерений ЭД гамма-излучения различными ТЛД-комплектами, определить правильность калибровки ТЛ-дозиметров, используемой участниками сличений для расчетов ЭД, выявить имеющиеся систематические погрешности при измерениях такого рода путем оценки расхождения между измеренным и образцовым значениями ЭД, в ряде случаев провести метрологическую аттестацию комплектов.

Литература

Фоминих В.И., Федина С.А. Сличение термолуминесцентных дозиметрических установок. - В кн.: Тезисы докладов У Всесоюзного симпозиума по люминесцентным приемникам и преобразователям ионизирующего излучения. Таллин, 1985, с. 76-77.

COMPARISON OF TLD SYSTEMS

V.I. Fominykh, S.A. Fedina

S u m m a r y

The precision of exposure dose measurements for different TLD systems has been intercompared in the field of gamma radiation. The calibration coefficients for the TL doseimeters used were determined as correct and the systematic errors of the evaluated exposure doses were revealed by estimating the differences between the mean of the evaluated exposure doses and the specified exposure dose. In a number of cases the metrological calibration of TLD systems was carried out.

ИССЛЕДОВАНИЯ, РАЗРАБОТКА И ПРОИЗВОДСТВО
ЭФФЕКТИВНЫХ ЛЮМИНОФОРОВ ДЛЯ РЕНТГЕНОВСКИХ ЭКРАНОВ

И.Г. Капленов, Л.А. Бендерский, В.А. Гаркуша

На базе совместных исследований ВНИИЛ и МНИРРИ разработаны рентгенолюминофоры на основе $\text{CaWO}_4 \cdot \text{CaCl}_2$, $\text{LaOBr} \cdot \text{Tb}^{3+}$, $\text{BaFCl} \cdot \text{Eu}$, $\text{Ba}_3(\text{PO}_4)_2 \cdot \text{Eu}$, позволяющие уменьшить дозу облучения пациентов, повысить разрешающую способность рентгеновских экранов, расширить их применение.

Вольфраматы люминофоры освоены промышленностью. Остальные находятся на стадии освоения.

Несмотря на то, что в последние годы выпускаются новые рентгенолюминофоры, по некоторым параметрам превосходящие вольфрамат кальция, последний до настоящего времени не утратил своего значения в медицине. Этому способствует относительно низкая стоимость люминофора, постоянно улучшающееся качество вольфрамата кальция и рентгеновских экранов [1, 2, 3].

В нашей стране кальцийвольфраматный люминофор до 1980 года выпускался под маркой Р-420 [4]. Он обладал существенными недостатками, связанными с технологией синтеза и наличием высокой концентрации примесей в исходных материалах, гасящих люминесценцию [5]. К недостаткам люминофора Р-420 можно отнести низкую интенсивность рентгенолюминесценции (РЛ) и связанную с этим необходимость применения высокой дозы облучения при рентгенографии. Относительно большой средний размер и разброс по величине зерна, а также отсутствие совершенной огранки кристаллов люминофора значительно снижали информативность рентгеновского снимка из-за низкой разрешающей способности экрана.

Содержание гасителей люминесценции в исходных материалах (CaCl_2 и Na_2WO_4) было таково, что для получения люминофора с достаточной интенсивностью РЛ приходилось прокалывать ших-

ту при повышенной температуре до 1100–1200°C с фосфатным плавнем (фосфор здесь был выбран как гаситель послесвечения), что приводило к загрязнению люминофора фосфором и натрием и делало невозможным контролировать рост и форму кристаллов [6].

В связи с изложенным в нашем институте совместно с МНИРРИ исследовалось влияние различных примесей на люминесцентные свойства вольфрамата кальция [7–11]. Было показано, что наибольшее гасящее действие на РЛ кальцийвольфраматного люминофора оказывают элементы пятой группы, а также железо и медь, причем мышьяк, сурьма, ниобий и тантал не только гасят люминесценцию, но и увеличивают послесвечение люминофора. Определены максимально допустимые количества элементов пятой группы, меди и железа, почти не влияющие на интенсивность РЛ и послесвечение люминофора. Эти работы позволили выбрать и разработать максимально эффективные методы очистки вольфрамата натрия и хлорида кальция, причем стало возможным при синтезе люминофора использовать технический хлорид кальция [12, 13].

Проводились работы по изучению кинетики формирования люминофора в зависимости от синтеза и количества плавня, влияния температуры и длительности прокаливания на величину и форму зерен вольфрамата кальция [14], что дало возможность подобрать наиболее подходящий пламень ($CaCl_2$), оптимальное его содержание, а также режим прокаливания люминофора.

Освоение новой технологии кальцийвольфраматного люминофора осуществлено на Ставропольском заводе химреактивов и люминофоров им. 50-летия СССР [12].

Люминофор Р-420-1 по всем характеристикам превосходит выпускавшийся ранее. Так, интенсивность РЛ экранов с $CaWO_4 \cdot CaCl_2$ люминофором повысилась почти вдвое, послесвечение снизилось в три раза, средний размер зерна люминофора стал меньше на 2 мкм, значительно уменьшен разброс по величине зерна, а кристаллы имеют форму, близкую к сферической.

Внедрение новой технологии получения кальцийвольфраматного люминофора сделало возможным получить еще 2 его модификации.

Мелкозернистый кальцийвольфраматный люминофор (средний

размер зерна до 5 мкм) выпускается под маркой Р-420-3. Экраны с ним обладают повышенной разрешающей способностью, низким послесвечением и, как показали испытания в институте электросварки имени О.Е. Патона АН УССР, не уступают по этим параметрам флюорометаллическому экрану фирмы Мипубиси. Луминофор Р-420-3 разработан для медицинской и промышленной радиографии.

Вторая модификация кальцийвольфраматного луминофора Р-420-2 обладает более высокой интенсивностью РЛ (1,25) относительно Р-420-1 и средним размером зерна 12-20 мкм и предназначен для дефектоскопии при высоких напряжениях на трубке.

Сравнительные испытания некоторых видов экранов с вольфраматными луминофорами, изготовленными в нашей стране и ведущими в этой области зарубежными фирмами, показали, что изделия с нашими луминофорами не уступают лучшим зарубежным образцам.

В последнее время как за рубежом [15-17], так и в нашей стране [18] разработаны луминофоры для рентгеновских экранов сверхвысокого усиления.

Среди них такие эффективные рентгенолюминофоры, как оксидбромид лантана, активированный тербием, и флюорохлорид бария, активированный европием.

Основная трудность при синтезе $LaOBr \cdot Tb, Yb$ состояла в том, что оксид лантана, полученный на отечественных предприятиях, содержит радиоактивные примеси. Луминофор, изготовленный из такого оксида лантана, обладает довольно высокой фоновой радиолуминесценцией, которая проявляется в потемнении рентгеновской пленки, находящейся в длительном (более часа) контакте с экраном.

По инициативе МНИРРИ на предприятии Минцветмета получен оксид лантана без радиоактивных примесей. Из этого оксида нами совместно с МНИРРИ разработано два варианта технологии получения $LaOBr \cdot Tb, Yb$ -люминофора (Р-417), которая в этом году внедряется в промышленное производство. Исследования, проведенные ранее, дали возможность получить рентгенолюминофор с послесвечением примерно в два раза меньше, чем у луминофора того же состава, изготавливающегося в ЦДР (Р-26 $AlaM$)

а послесвечение, возникающее под действием видимого света, ниже в несколько раз.

Совместно с МНИГРИ исследовалась также разработка технологии получения рентгенолюминофора Р-385 [19] на основе флюорохлорида бария, активированного европием. Создан метод синтеза люминофора, позволивший значительно снизить послесвечение. Сравнительные измерения параметров экранов из этого люминофора выявили их преимущества перед некоторыми другими экранами [20]. Первые опытно-промышленные партии этого люминофора получены в 1982 году. В настоящее время организуется промышленный выпуск люминофора Р-385.

Качество изображения у экранов сверхвысокого усиления (АЭУ-Л1 и ЭУ-ФХ) несколько хуже, чем у вольфраматных экранов, из-за проявления квантовой зернистости. Поэтому их применение ограничено. Однако использование экранов сверхвысокого усиления позволяет в несколько раз снизить дозу облучения пациентов при рентгеновских обследованиях.

Представляет интерес и $\text{Ba}_3(\text{PO}_4)_2: \text{Eu}$ -люминофор (Р-415), разработанный нами совместно с МНИГРИ [21, 22]. Этот люминофор отличается исчезающе коротким послесвечением и повышенной (в 1,8-2 раза) интенсивностью по сравнению с вольфраматным люминофором. Промышленный выпуск люминофора Р-415 организован на Ставропольском заводе химреактивов и люминофоров им. 50-летия СССР.

Литература

1. Гурвич А.М. Рентгенолюминофоры и рентгеновские экраны. - М.: Атомиздат, 1976, с. 152.
2. Каталог фирмы Касэй Оптоникс (Япония) "KYOKKO Phosphors Kasei Optonix, Ltd", 1982; Проспект фирмы Касэй Оптоникс (Япония) "KYOKKO Intensifying Screens Kasei Optonix, Ltd", 1982.
3. Проспект фирмы Дж.ТЭ-Сильвания (США), "X-ray Phosphors - Newsletter GTE Sylvania Inc.", 1981.

4. Косинцев Ф.И. Проблемы химии и технологии рентгено- и термолюминофоров и перспектива их развития. - Материалы III Всесоюзн. симп. по люм. приемникам и преобраз. рентген. излучения. Ставрополь, 1980, с. 5.
5. Гурвич А.М., Лагунова И.Г. Исследование люминесцентных средств преобразования изображения (доклад, обобщающий совокупность работ). М., 1971, с. 15.
6. Гурвич А.М., Михалев А.А., Томбак М.И. Влияние температуры прокаливания шихты на люминесценцию вольфрамата кальция. - В кн.: Люминесцентные материалы и особо чистые вещества. Ставрополь, 1972, вып. 7, с. 18-26.
7. Михалев А.А., Лагунов М.Д. О содержании хлорида в люминофорах на основе вольфрамата кальция. - В кн.: Люминесцентные материалы и особо чистые вещества. Ставрополь, 1973, вып. 8, с. 87-92; Михалев А.А., Мелешкин М.Н., Капленов И.Г., Подсадная Л.П. Влияние примесей и препаративных факторов на оптические свойства самоактивированного вольфрамата кальция. - Изв. АН СССР. Сер. физ., 1974, т. 36, № 6, с. 1151.
8. Капленов И.Г. Фото и термостимулированные процессы в люминесценции вольфрамата кальция: Автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук. Иркутск, 1983.
9. Gurvich A.M., Gutan V.B., Meleshkin B.N., Mikhailin V.V., Mikhalev A.A., Tombak M.J. On the nature of optically active centres in selfactivated luminophore of the $CaWO_4$ type. - J. Luminescence, 1977, vol. 15, N 2, p. 187-189.
10. Гурвич А.М., Гутан В.Б., Михалев А.А. Природа центров свечения, захвата и тушения кальцийвольфраматного люминофора. - В кн.: Люминесцентные материалы и особо чистые вещества. Ставрополь, 1975, вып. 12, с. 30.
11. Капленов И.Г., Михалев А.А., Подсадная Л.П. Тушение рентгенолюминоесценции в кальцийвольфраматных фосфорах. - В кн.: Люминесцентные материалы и особо чистые вещества. Ставрополь, 1974, вып. 10, с. 100.
12. Ишкова А.И., Капленов И.Г., Бендерский Д.А., Манаширова Г.М., Соловьев В.В. - Тез. докл. "Всесоюзн. совещ. по технологии, процессам, аппаратам и качеству лю-

- минофоров и особо чистых материалов". Ставрополь, 1980, с. 26.
13. Михалев А.А. и др. Авт. свид. (СССР) № 451343, 1972; № 581699, 1975.
14. Гурвич А.М. и др. Авт. свид. (СССР) № 340279, 1970.
15. Stevels A.L.N., Schrama A.D.M. Theoretical and experimental efficiencies of X-ray screens. - de Pauw - J. Electrochem. Soc., 1976, vol. 123, N.6, p. 886.
16. Sommerdijk J.L., Versteegen J.H.P.J., Brill A. Luminescence of $MeF_x:Eu^{2+}$ (Me = Sr, Ba; X = Cl, Br) - J. Luminescence, 1974, vol. 8, p. 502-506.
17. Пат. (США) № 3546128, 1970, Пат. (ФРГ) № 2721517, 1978, Пат. (США) № 4208470, 1980.
18. Гурвич А.М., Головкова С.И., Ильина М.А., Мягкова М.Г. Физико-химическая природа и процессы образования современных рентгенолюминофоров. - IV Всесоюзный симпозиум "Люминесцентные приемники и преобразователи рентгеновского излучения": Тез. докл. Иркутск, 1982, с. 152.
19. Кронгауз В.Г., Мерзляков А.Т., Бендерский Л.А., Гурвич А.М. Мягкова М.Г. Исследование рентгенолюминофоров, активированных европием. - Тезисы докладов III Всесоюзного симпозиума по люминесцентным приемникам и преобразователям рентген. излучения. Ставрополь, 1979, с. 30.
20. Мягкова М.Г., Попова З.П. Бендерский Л.А., Кутельма М.К. Опыт применения высокоэффективных усиливающих экранов из фторохлорида бария. - Вест. рентгенологии и радиологии. М.: Медицина, 1984, № 5, с. 84.
21. Бендерский Л.А., Манаширова Г.М., Гурвич А.М., Боев Э.И., Никифорова А.П. Исследование люминесценции фосфоров, галофосфатов и силикатов, активированных европием. - Изв. АН СССР. Сер. физ., 1974, т. 38, с. 1175.
22. Gurvič A.M., Bojev E.I., Nikiforova A.P., Popova Z.P., Katomina R.V., Bendersky L.A., Manaširova G.M. Eigenschaften und Anwendbarkeit von Verstärkerfolien aus mit Europium aktiviertem Bariumphosphat. - Radiol. Diagn. 1974, Bd. 15, N 6, S. 829.

INVESTIGATION, ELABORATION, AND PRODUCTION
OF EFFICIENT LUMINOPHORS FOR X-RAY SCREENS

I.G. Kaplenov, L.A. Benderevskij,
V.A. Garkusha

S u m m a r y

X-ray phosphors based on CaWO_4 : CaCl_2 , LaOBr : Tb, Yb, BaFCl : Eu and $\text{Ba}_3(\text{PO}_4)_2$: Eu have been developed. These have bettered characteristics, which makes it possible to reduce the irradiation dose on examining patients, to raise the resolution of screens and to extend the field of their application.

**ИССЛЕДОВАНИЕ РАДИАЦИОННЫХ ХАРАКТЕРИСТИК
ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЕЙ
РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ (ТЛП)**

Ю. А. Москалев, А. В. Дмитриева

Рассмотрены зависимости запасаения светосуммы от доз рентгеновского излучения для термолюминесцентных преобразователей (ТЛП) на основе $CdSO_4 \cdot Mn, Sm$ и $PbSO_4 \cdot Mn, Cs$. Установлен характер влияния дозы облучения на величину дефектоскопической чувствительности ТЛП. Приводятся результаты расчета функции преобразования радиационного контраста люминесцентными преобразователями. Установлено, что люминесцентные преобразователи на основе "легких" люминофоров в 1,5-2 раза усиливают контраст изображения по сравнению с радиационным контрастом.

Термолюминесцентный преобразователь рентгеновского излучения (ТЛП), разработанный в НИИ ЭИ для радиационного контроля качества материалов и изделий, представляет собой экран размером 30 x 40 см, основой которого является теплопроводящая подложка из алюминия. Радиационно-чувствительным материалом в ТЛП являются термоллюминофоры на основе сульфатов кадмия и свинца, нанесенные на подложку слоем толщиной 0,7-1,0 мм.

В результате отработки технологии были синтезированы термоллюминофоры $CdSO_4 \cdot Mn \cdot Sm$ с энергетическим выходом термоллюминесценции 8% и $PbSO_4 \cdot Mn \cdot Cs$ с энергетическим выходом 2%. Для сравнения следует отметить, что энергетический выход термоллюминесценции серийно выпускаемого ZnS, Cu под маркой ФКП-03К составляет 1,7%. Измерение соотношения между выходом рентгенолюминесценции и термоллюминесценции для исследуемых сульфатов показало, что для $CdSO_4 \cdot Mn \cdot Sm$ доля термоллюминесценции составляет 85% от полной светоотдачи и для $PbSO_4 \cdot Mn \cdot Cs$ - 34%.

Для определения характеристик ТЛП как преобразователя

рентгеновского изображения в световое, были измерены зависимости светосуммы от экспозиционной дозы. В таблице I приведены значения светосуммы для сульфата кадмия и сульфата

Таблица I

Зависимость светосуммы ТЛП от дозы рентгеновского излучения

Table 1

Dependence of the TLC light sum on the X-irradiation dose

Доза, рентген	I	3	5	7	10
Светосумма, отн.ед.	15	63	108	150	208
Светосумма, отн.ед.	3,7	8,2	28	37	52

свинца в диапазоне доз излучения I-10 рентген. В таблице 2 приведены зависимости яркости свечения в пике термовысвечивания от дозы для сульфата кадмия и сульфата свинца в диапазоне доз 100-20000 рентген. Из полученных зависимостей сле-

Таблица 2

Зависимость яркости термолуминесценции в пике термовысвечивания ТЛП от дозы рентгеновского излучения

Table 2

Dependence of thermoluminescence brightness on the X-irradiation dose in the maximum of TLC thermoluminescence

Доза, рентген	200	500	1000	4000	8000	16000	20000
Яркость, кд/м ²	7	27	36	49	56	61	62
Яркость, кд/м ²	1,7	6,7	9	12,2	14	15,2	15,5

дует, что пропорциональность между светосуммой и экспозиционной дозой сохраняется в диапазоне I-100 Р и, следовательно, в этом интервале возможно получение качественных по-

лутоновых изображений для ТЛП на основе $CdSO_4 \cdot Mn \cdot Sm$ и $PbSO_4 \cdot Mn \cdot Cs$. Яркость свечения при этом достигает величины 35-40 кд/м².

Проведена оценка влияния дозы излучения на дефектоскопическую чувствительность ТЛП, которая определяется минимально различимым визуальным перепадом толщины контролируемого объекта. Зависимость приведена в таблице 3.

Таблица 3

Дефектоскопическая чувствительность ТЛП при различных дозах рентгеновского излучения

Table 3

Defectoscopic sensitivity of TLC at different X-irradiation doses

Д о з а, Р	Дефектоскопическая чувствительность, %		
I	5,2	1,8	1,0
10	1,8	1,8	0,6
100	1,0	0,8	0,5

Из сопоставления данных таблиц 1, 2, 3 следует, что одной из основных характеристик ТЛП, определяющих дефектоскопическую чувствительность, является скорость накопления светосуммы. При постоянной мощности дозы эта величина переменна и достигает максимальной величины в диапазоне доз 1-1000 рентген. В результате экспериментов установлено, что средняя доза, необходимая для получения изображения при просвечивании алюминия толщиной 5-50 мм, составляет 5-10 рентген при наблюдении изображения оператором без темновой адаптации. Яркость свечения экрана при этом составляет

$$0,12 \frac{\text{кд мин}}{\text{м}^2 \text{ рентген}} .$$

Важной характеристикой ТЛП для практического применения в интроскопии является время хранения запасенной светосуммы. В обычных условиях дефектоскопической лаборатории бывает достаточным время хранения изображения 10-60 мин. Однако при

использовании ТЛП в полевых условиях необходимо, чтобы скрытое изображение сохранялось в течение нескольких суток. Для исследования этой характеристики была измерена зависимость запасенной светосуммы от времени хранения экспонированного экрана. График зависимости для ТЛП из сульфата кадмия, активированного марганцем и самарием, представлен в таблице 4. Из приведенных данных видно, что наиболее резкий спад запасенной светосуммы происходит в первые 2 часа после облучения, затем уменьшение светосуммы стабилизируется и приблизительно составляет 0,3% от первоначального уровня в час. Через 7 суток после облучения остаточная светосумма составляет 40% от первоначальной, что вполне достаточно для практического использования ТЛП.

Таблица 4

Зависимость светосуммы, запасаемой ТЛП,
от времени хранения

Table 4

Dependence of the light sum accumulated
in TLC on the storage time

Время хранения ТЛП, сутки	0	1	2	3	4	5	6	7
Запасенная светосумма, отн. ед.	440	330	280	260	220	210	180	165

Весьма важным процессом при исследовании люминесцентных преобразователей является преобразование рентгеновского контраста в контраст светового изображения на люминесцентном слое. В особенности это относится к рентгеновской диагностике и дефектоскопии объектов малой плотности, в том числе пластмассовых и алюминиевых. В данном случае изменение контраста изображения люминесцентным преобразователем обусловлено спектральной чувствительностью люминесцентного слоя и фильтрацией жесткой компоненты спектра излучения рентгеновских аппаратов через объекты малой плотности. Для решения указанного вопроса использовано понятие о собственном контрасте люминесцентного преобразователя, выражение для которо-

го представлено в следующем виде:

$$K_S = \frac{B_x + B_{x+\Delta x}}{B_{x+\Delta x}} = \frac{\int_0^{U_m} P_N(E) e^{-\mu(E)x} G(E) [e^{-\mu(E)\Delta x} - 1] dE}{\int_0^{U_m} P_N(E) e^{-\mu(E)x} G(E) dE},$$

где B_x и $B_{x+\Delta x}$ — яркости свечения люминесцентного экрана на участках, соответствующих двум различным толщинам просвечиваемого объекта;

x — толщина просвечиваемого объекта;

Δx — ступенчатое изменение толщины объекта;

U_m — напряжение генерирования излучения рентгеновским аппаратом;

$\mu(E)$ — линейный коэффициент ослабления излучения объектом;

$G(E)$ — спектральная чувствительность люминесцентного преобразователя.

Для случая малоконтрастных изображений с относительным изменением толщины $\Delta x/x = 1-3\%$ с использованием указанного выражения был проведен расчет отношения собственного контраста на преобразователе K_S и радиационному контрасту K_R . При этом под радиационным контрастом понимался собственный контраст изображения, создаваемый излучением на "идеальном" преобразователе, поглощающем всю энергию падающего на него излучения. На рис. 1 приведены кривые зависимости отношения собственного светового контраста на преобразователе к радиационному контрасту от атомного номера металла основания люминофора.

Кривые построены для случая просвечивания алюминиевых изделий толщиной 0,6-3,8 см при напряжении на рентгеновской трубке 120 кВ. Как видно из графика, наибольшее усиление контраста в 1,5-2 раза достигается для люминофоров с атомным номером металла основания в диапазоне 3-30, которым соответствуют "легкие" соединения: лития, бериллия, бора, натрия, магния, алюминия и т.д. до цинка.

Наименьшее усиление контраста имеет место для тяжелых люминофоров на основе свинца и кадмия, а также для иодида

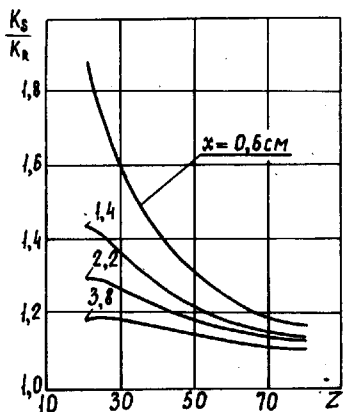


Рис. 1. Зависимость отношения контраста на люминесцентном преобразователе K_S к радиационному контрасту K_R от атомного номера металла основания люминофора при различной толщине x алюминиевых объектов.

Fig. 1. Contrast ratio K_S/K_R vs the atomic number of the phosphor - based metal at different thickness X of Al objects.

пезия. В данном случае превышение светового контраста над радиационным достигает 10-15%.

В значительной степени на величину усиления контраста влияет толщина объекта контроля, фильтрующего рентгеновское излучение. Эта зависимость представлена на рис. 2. Из графиков видно, что наибольшее усиление контраста в 1,5-2 раза соответствует люминофорам типа $CaSO_4$ и ZnS для объектов с эквивалентной толщиной до 1 см алюминия. Следовательно, при диагностике и контроле биологических, пластмассовых или алюминиевых объектов не следует увлекаться применением люминесцентных экранов из тяжелых люминофоров, т.к. это может привести к уменьшению выявляемости дефектов по сравнению с более легкими люминофорами. Подтверждением этому являются испытания экранов из Cs_2Te в медицинской диагностике, про-

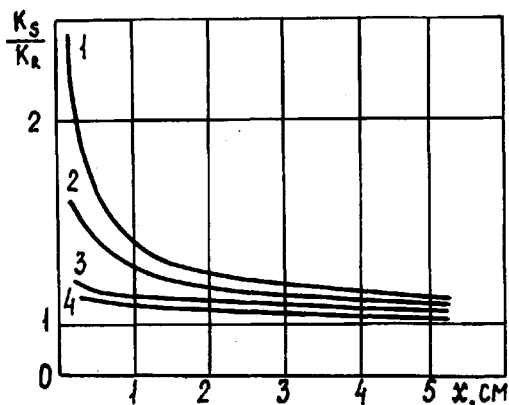


Рис. 2. Зависимость отношения контрастов $\frac{K_S}{K_R}$ от толщины просвечиваемых объектов из алюминия. 1 - преобразователь на основе люминофора CaSO_4 ; 2 - ZnS ; 3 - CdSO_4 ; 4 - PbSO_4 .

Fig. 2. Contrast ratio K_S/K_R vs the thickness of the X-rayed Al object CaSO_4 - (1), ZnS - (2), CdSO_4 - (3), PbSO_4 - (4) based converters.

веденные в поликлиниках г. Томска. В результате этих испытаний было установлено заметное снижение контраста изображения на экранах ЭРС-Ц по сравнению с серийным экраном из люминофора ZnS . Как показали проведенные расчеты и испытания, имеется определенное оптимальное соотношение между составом просвечиваемого объекта и составом люминесцентного экрана, которое необходимо учитывать при создании люминесцентных преобразователей для достижения на них максимального контраста изображения.

INVESTIGATION OF RADIATIONAL CHARACTERISTICS
OF TLC

Ya.A. Moskalev, A.V. Dmitrieva

S u m m a r y

The range of proportionality between the accumulated lightsum and an X-irradiation dose for thermoluminescent converters (TLC) based on Ca, Cd and Pb sulphates has been established to be 1-1000 R.

It has been proved that the decisive factor for the defectoscopic sensitivity of TCL is the accumulation of the light sum. The calculations of the conversion of radiation contrast with luminescent converters has shown that these converters based on phosphors with small Z amplify the radiation contrast 1.5 - 2 times when the testing product is of low density.

ВАЖНЕЙШИЕ СВОЙСТВА И ОБЛАСТИ ПРИМЕНЕНИЯ ВОЛЬФРАМАТНЫХ И РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ УСИЛИВАЮЩИХ ЭКРАНОВ

А.М. Гурвич, Р.В. Катомина, Н.И. Леонова,
М.Г. Мягкова, М.И. Томбак

Проанализировано влияние свойств усиливающих экранов и других факторов на пороговый контраст, при котором детали различного размера могут быть выявлены на изображении. Определены пределы допустимого повышения эффективности экранов и чувствительности их комбинации с пленкой. Рассмотрены также другие свойства экранов, определяющие возможности их применения, в частности эффекты, связанные с наличием радиоактивных примесей.

Поиски путей снижения лучевых нагрузок на пациентов в рентгенодиагностике, являющейся основным источником фоновой облучения населения [1], привели к созданию ряда эффективных преобразователей рентгеновского изображения, среди которых важное место занимают люминесцентные усиливающие экраны, позволившие значительно сократить экспозицию по сравнению с экранами, применявшимися ранее. Вместе с тем их использование в ряде случаев влечет за собой увеличение зернистости изображения [2, 3], снижающей информативность рентгенограмм. Возникает проблема выяснения того, какими свойствами должен обладать люминофор, чтобы повышение чувствительности комбинации экранов с пленкой не вызвало существенного ухудшения качества изображения.

Одним из наиболее плодотворных путей решения этой задачи является анализ факторов, определяющих пороговый контраст ΔJ_{min} , при котором детали исследуемого объекта могут быть выявлены на изображении с заданной вероятностью. Как было показано ранее [4], величина ΔJ_{min} складывается из 4-х компонентов:

$$\Delta J_{\min}^2 = (\Delta J_v)^2 + (\Delta J_q)^2 + (\Delta J_{st})^2 + (\Delta J_F)^2 = \quad (I)$$

$$= (\Delta J_v)^2 + \frac{\Psi_t^2}{\Omega} [0,434 \gamma M(v)]^2 \left(\frac{1}{N} + \psi_{st}^2 \right) + \frac{\Psi_t^2}{\Omega} \psi_F^2,$$

где ΔJ_v - пороговый контраст зрения, выраженный как и ΔJ_{\min} в единицах плотности почернения [5]; ΔJ_q , ΔJ_{st} , ΔJ_F - компоненты ΔJ_{\min} , обусловленные флуктуациями в пространственном распределении рентгеновских квантов и структурной зернистостью усиливающих экранов и рентгенографической пленки соответственно; Ψ_t - пороговое отношение сигнал-шум (в наших расчетах принималось $\Psi_t = 3$, чему соответствует максимальная вероятность выявления детали $P = 0,93$ [6]; Ω - площадь рассматриваемого изображения детали; γ - градиент характеристической кривой пленки при выбранной плотности почернения; ν - пространственная частота в мм^{-1} (для шаровидных образований диаметром d $\nu \approx 1/(2d)$ [7, 8]); $M(\nu)$ - частотно-контрастная характеристика (ЧКХ) системы; - число фотонов рентгеновского излучения на 1 мм^2 необходимо для достижения заданной плотности почернения; ψ_{st} - независимый от ν фактор структурной зернистости экранов; ψ_F - коэффициент Селвина, характеризующий зернистость пленки. Для использования пленки РМ-1 найдено $\psi_F^2 = 2,6 \cdot 10^{-6} \text{ мм}^2$ [4], $\gamma = 2,5$. Исходя из данных измерения спектра Винера [9] для наиболее широко применявшихся до сих пор CaWO_4 - экранов типа ЭУ-В2 получено $\psi_{st}^2 = 2,1 \cdot 10^{-5} \text{ мм}^2$. Разница между ψ_F^2 и ψ_{st}^2 примерно отвечает различию в числе зерен AgBr в эмульсионных слоях пленки и CaWO_4 в усиливающих экранах на единицу площади, что подтверждает флуктуационный характер структурной зернистости [5, 10]. На основе приведенных значений γ , ψ_F^2 и ψ_{st}^2 , экспериментально измеренных ЧКХ экранов, поглощения рентгеновского излучения в них и чувствительности их комбинации с пленкой S и данных Блекуэла [9] для порогового контраста зрения при $P = 0,95$ найдены значения всех составляющих ΔJ_{\min} при различных ν . Результаты этих вычислений, относящихся к эффективной энергии квантов $E_{\text{эф}} = 50 \text{ кэВ}$, представлены на рис. 1. При этом для ΔJ_q при-

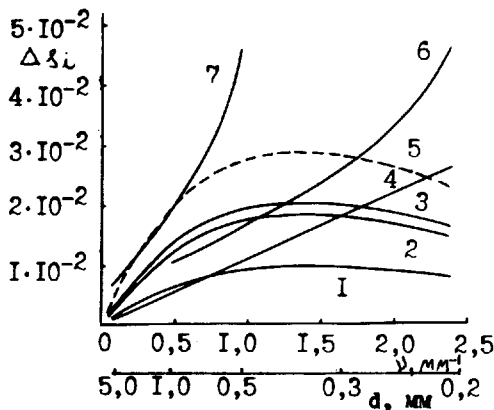


Рис. 1. Зависимость от пространственной частоты составляющих порогового контраста, обусловленных: 1, 3, 5 - квантовой зернистостью при использовании комбинации экранов с пленкой ЭУ-В2/РМ-1 (1), ЭУ-И1/РМ-1 (3), ЭУ-И1/РМ-В (5); 2 - структурной зернистостью экранов; 4 - зернистостью пленки; 6, 7 - зрительным (фотонным и сенсорным) шумом при расстоянии наблюдения 20 см (6) и 50 см (7). Данные относятся к $E_{эф} = 50$ кэВ. По оси абсцисс - шкала размеров шаровидных деталей.

Fig. 1. The spatial frequency dependence of the components of threshold contrast, which are caused by: 1, 3, 5 - quantum mottle on using the screen-film system EU-V2/RM-1 (1), EU-I1/RM-1 (3), EU-I1/RM-V (5); 2 - structural mottle of screens; 4 - film mottle; 6, 7 - visual (photon and sensor) noise at the observation distance of 20 cm (6) and 50 cm (7). The data relate to $E_{eff} = 50$ keV. On the coordinate axis there is the scale for the size of spherical details.

ведены три кривые: для комбинации экранов ЭУ-В2 с пленкой РМ-1 ($S = 600 \text{ P}^{-2}$ [5]*), для γ , O_2 , S-Tb-экранов ЭУ-ИП, обладающих квантовой эффективностью в 4,5 раза большей, чем у экранов ЭУ-В2, при использовании той же пленки и для тех же экранов и пленки РМ-В с чувствительностью, в 2 раза большей, чем у РМ-1. Зависимость ΔJ_v от v представлена двумя кривыми: одна из них относится к минимальному расстоянию наблюдения $l = 20\text{--}25$ см, являющемуся наилучшим для различения наиболее мелких деталей ($d = 0,3\text{--}1,0$ мм), а вторая - к расстоянию $l = 50$, оптимальному для обнаружения деталей размером 1-3 мм [7]. Анализ этих данных приводит к следующим выводам.

1. Относительный вклад величин ΔJ_{qv} и ΔJ_{at} в пороговый контраст уменьшается с ростом v ; как следует из уравнения (1), это происходит вследствие падения $M(v)$.

2. Квантовая зернистость, незначительная для комбинации экранов ЭУ-В2 с пленкой РМ-1, начинает существенно влиять на различаемость деталей размером 0,4-1 мм при переходе к экранам ЭУ-ИП (аналогичный эффект дает также увеличение $E_{\text{эф}}$ в 3-4 раза, т.е. переход к условиям, применяемым в дефектоскопии при исследовании стальных изделий толщиной 25-30 мм [2]).

3. Структурная зернистость экранов ЭУ-В2 также влияет на различаемость деталей размером 0,5-1 мм, однако ее вклад в пороговый контраст может быть снижен путем уменьшения среднего размера зерен d_z . Так, при переходе от $d_z = 13$ мкм к $d_z = 7,5$ мкм величина ΔJ_{at} при прочих равных условиях уменьшается в 2 раза и становится меньше ΔJ_v (это осуществлено путем усовершенствования способа получения CaWO_4 -люминофора [13, 14]).

4. При $l = 50$ см решающую роль в различаемости деталей размером 1-3 мм и больше играет пороговый контраст зрения, если используется сравнительно малочувствительная пленка РМ-1 даже в комбинации с высокоэффективными редкоземельными усиливающими экранами. Однако при переходе к более чувствительной пленке РМ-В доминирующим становится влияние квантовых флуктуаций.

* Это отвечает $S \approx 500 \text{ P}^{-1}$ для принятых в настоящее время условий испытания пленок [11].

Отсюда следует, что наиболее эффективные усиливающие экраны должны применяться в сочетании с пленкой относительно невысокой чувствительности и притом в тех случаях, когда не требуется выявлять детали размером менее 1 мм, например, при рентгенографии органов брюшной полости (кроме случаев применения метода двойного контрастирования), при получении снимков сердца и крупных сосудов, поясничного отдела позвоночника, мочевыделительной системы. Это как раз те применения рентгенографии, которые вносят особенно большой вклад в среднюю индивидуальную дозу облучения населения.

Экспериментально влияние квантовых флуктуаций на выявляемость деталей было исследовано методом кривых вероятности обнаружения сигнала (ROC-кривых) [15]. Результаты исследования демонстрируются на рис. 2: вследствие неблагоприятного влияния квантового шума ROC-кривая для мелкозернистых Y_2O_3S-Tb -экранов ЭУ-ИБ идет ниже кривой для $CaWO_4$ -экранов ЭУ-ВЗА, свидетельствуя о меньшей вероятности обнаружения деталей, несмотря на лучшую (при 50 кэВ) ЧКХ экранов ЭУ-ИБ по сравнению с ЭУ-ВЗА. О таком же ухудшении выявляемости деталей при переходе от $CaWO_4$ -экранов к экранам из $BaFCl-Eu$ и Gd_2O_3-Tb говорит уменьшение величины, характеризующей влияние экранов на отношение сигнал/шум так называемого "эквивалентного шуму числа квантов" (NEQ) [16].

Несмотря на указанный недостаток экранов, изготавливаемых из наиболее эффективных редкоземельных люминофоров, они могут быть использованы не только для снижения в ряде случаев лучевых нагрузок на пациентов, но и для других целей. Так, возможность применения в сочетании с ними пленки пониженной чувствительности позволяет уменьшить расход серебра на изготовление рентгенографических пленок [17]. Кроме того, если снизить технический выход люминесценции экранов из таких фосфоров, как $LaOBn-Tb, Yb$ и $BaFCl-Eu$, например, путем применения поглощающего свет красителя, то благодаря их преимуществу перед $CaWO_4$ в поглощении рентгеновского излучения применяемых в диагностике энергий сохраняется возможность некоторого снижения доз облучения пациентов, но без ухудшения качества изображения, а иногда и с его улучшением. С переходом к более высоким энергиям $E_{эф}$ это преимущество $LaOBn$

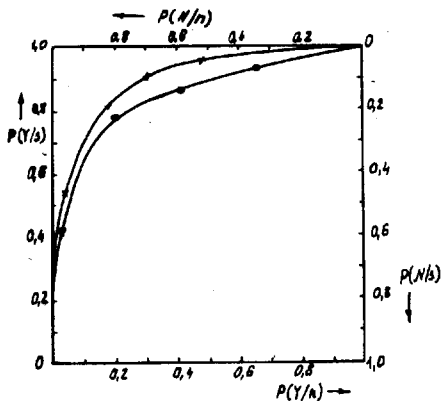


Рис. 2. ROC-кривые для $CaWO_4$ -экранов ЭУ-ВЗА (1) и Y_2O_2S-Tb -экранов ЭУ-И5 (2), полученные с помощью тест-фантома легких, состоящего из кювет с водой суммарной толщиной 13 см и помещенных между ними поролоновых прокладок с закрепленными между ними 50 бусинами от органического стекла диаметром 2 мм. Снимки получены на пленке РМ-1 при напряжении на трубке 76 кВ и экспозиции, обеспечивающей равную плотность почернения при использовании экранов обоих типов. По координатным осям отложены значения вероятностей истинно-положительной $P(Y/s)$, ложноположительной $P(Y/n)$, истинно-отрицательной $P(N/n)$ и ложно-отрицательной $P(N/A)$ интерпретаций.

Fig. 2. ROC curves for $CaWO_4$ and Y_2O_2S-Tb screens obtained by means of a lung test-phantom consisting of water cuvettes, total width 13 cm, and foam washers with 50 2 mm - \varnothing perspex beads fastened between them. The radiographs obtained by using a RM-1 film at 76 kV and under exposition provided equal photographic density for both screen types. On coordinate axis, there the meanings of probabilities are in the following interpretations: truepositive $P(Y/s)$, falsepositive $P(Y/n)$, trueneegative $P(N/n)$ and falseneegative $P(N/s)$.

и $BaFCl$ -люминофоров утрачивается, и потому в дефектоскопии применяется почти исключительно $CaWO_4$. Использование поглощающего свет красителя наряду с уменьшением среднего размера зерен позволяет и в этом случае улучшить выявляемость деталей, поскольку при более благоприятной ЧКХ зернистость в области больших δ не возрастает, а в области малых δ существенно снижается [18].

С точки зрения обеспечения оптимального соотношения между поглощением рентгеновских квантов и выходом рентгенолюминесценции представляет интерес применение люминофоров на основе талантов редкоземельных элементов [19], ибо эти люминофоры способны эффективно поглощать рентгеновское излучение как средних (применяемых в медицине), так и высоких энергий.

До сих пор речь шла о выборе типа люминофора и области применения соответствующих экранов, исходя из таких характеристик их, как квантовая эффективность, способность к поглощению рентгеновского излучения и средний размер зерен. Фактически, однако, приходится считаться и с рядом других свойств, а также с технологическими и экономическими факторами. Это можно показать на примере того, как решается задача выбора рентгенолюминофора для усиливающих экранов из числа фосфоров, близких друг к другу по выходу рентгенолюминесценции и ее спектральному соответствию оптически несенсибилизированной рентгенографической пленке. Такими фосфорами являются Y_2O_3-Sr , $LaOBr-Tb, Yb$, $LaOBr-Tm$ и $BaFCl-Eu$. Первый из них химически стабилен, обладает малым послесвечением, но недостаточно эффективно поглощает рентгеновское излучение, генерируемое при 80-120 кВ, т.е. при напряжениях на трубке, рекомендуемых для рентгенографии большинства из тех медицинских объектов, снимки которых имеет смысл делать с применением наиболее эффективных экранов [20]. Поэтому в последнее время главное внимание уделяется люминофорам на основе $LaOBr$ и $BaFCl$ [21], хотя технологически они довольно сложны. Из них $BaFCl-Eu$ -люминофор обладает наибольшим выходом рентгенолюминесценции, позволяя достичь 7-кратного сокращения экспозиции по сравнению с экранами ЭУ-В2 22, но дает также и наибольшую зернистость на рентгенограммах.

Проблему устранения послесвечения $BaFCl - Eu$ вызывающего почернение пленки при длительном контакте ее с экранами, удалось решить различными способами, которые сводятся к предотвращению образования твердого раствора BaF_2 в $BaFCl$. Решена эта проблема и применительно к лиминофорам на основе $LaOBr$.

Сложнее обстоит дело с удалением следов радиоактивных примесей, сопровождающих соединения лантана [23] и бария [24]. Их наличие в фосфорах обнаруживается по радиолуминесценции, которая в отличие от послесвечения практически не изменяется во времени и вызывает грубозернистое почернение пленки, поскольку ее возбудителем являются альфа-частицы высокой энергии. Их источником, скорее всего, служат радиоактивные примеси ряда актиния в соединениях лантана [25] и радий в солях бария [24]. Темные точки, появляющиеся в результате действия радиолуминесценции, наиболее заметны на участках пленки с плотностью почернения \mathcal{J} около 0,5 над вуалью. Это объясняется формой кривой зависимости \mathcal{J} от экспозиции H (рис. 3): производная $d\mathcal{J}/dH$ максимальна при $\mathcal{J} \approx 0,5$. Поэтому при испытании лиминофоров и экранов на содержание радиоактивных примесей целесообразно до или после выдержки их в контакте с пленкой подвергать последнюю засветке, например, путем экспонирования с экранами, заведомо не обладающими радиоактивностью при дозе, обеспечивающей получение указанной плотности почернения. Аналогичная процедура по той же причине позволяет с большей надежностью выявить также послесвечение. Поступать так правильнее и потому, что это отвечает условиям практической работы.

Для обнаружения радиоактивных примесей в исходных материалах, например, La_2O_3 или солях бария, можно вместо получения из них лиминофора использовать полимерную пленку, содержащую $ZnS - Ag$ фосфор в количестве 5-10 мг·см⁻² и помещаемую между испытуемым материалом и рентгенографической пленкой [23]. Однако в этом случае, несмотря на высокий выход радиолуминесценции $ZnS - Ag$, для получения равного эффекта требуется более длительное экспонирование, чем при использовании эффективного лиминофора с фотоактивным свечением, изготовленного из контролируемого сырья (для $BaFCl - Eu$ разница во времени экспозиции 4-кратная). Это объясняется тем,

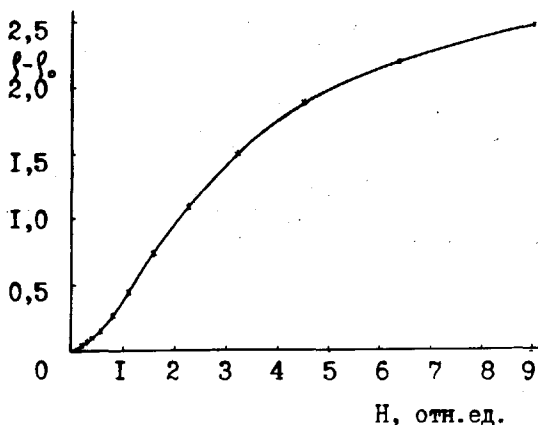


Рис. 3. Кривая зависимости плотности почернения рентгенографической пленки RM-I над вуалью от экспозиции H в относительных единицах, численно равных дозе рентгеновского излучения в мР, вызывающих такое же почернение при использовании CaWO_4 -экранов ЭУ-В1К.

Fig. 3. The dependence of the photographic density of RM-1 film above the fog on the exposition of H in arbitrary units numerically equal to the X-ray dose in mR, providing a similar photographic density as on using CaWO_4 screens EU-V1K.

что в последнем случае люминесценцию возбуждают примеси, расположенные во всей толще люминофора (экрана), тогда как вследствие малой длины свободного пробега альфа-частиц свечение пленки ZnS-Ag вызывается лишь примесями, содержащимися в тонком слое порошка (La_2O_3 , BaF_2 и т.п.), непосредственно соприкасающемся с пленкой, причем возбуждаемый таким путем свет, проходя через пленку ZnS-Ag , рассеивается в ней, в результате чего почернение получается более диффузным — его точечная структура "размывается". Следует

отметить, что обычные методы измерения радиоактивности часто оказываются еще менее чувствительными. Кроме того, их применение для целей контроля сырья, используемого при получении люминофоров, затруднено необходимостью учета неодинаковой эффективности различных компонентов радиоактивности как возбудителей люминесценции.

Анализ, проведенный описанными люминесцентно-фотографическими методами, показал, что в La_2O_3 , BaF_2 и $BaCe_2$, не подвергавшихся специальной очистке, обычно обнаруживаются следы радиоактивных примесей. Ранее при использовании $BaCe_2$ для получения рентгенолюминофоров наличие радиоактивности не было выявлено из-за низкого выхода рентгенолюминесценции в случае $BaSO_4-Pb$ и малого содержания бария в случае $Sr_{0,9}Ba_{0,1}SO_4-Eu$ -фосфора. Таким образом, при получении эффективных люминофоров требования к степени чистоты сырья становятся более жесткими, и часто приходится останавливать выбор на том люминофоре, для которого такая очистка более проста и доступна (применительно к La_2O_3 разные варианты ее описаны в работах [25, 26]). Учитываются, естественно, и такие факторы, как стоимость и дефицитность сырья, химическая стойкость люминофора и безопасность его производства.

Литература

1. Баев Н.С., Демян В.Ф., Ильин Л.А. и др. Ядерная энергетика, человек и окружающая среда / Под ред. А.П. Александрова. - М.: Энергоиздат, 1981.
2. Deganhardt H. Пат. ФРГ 3031267, 19.08.80/18.03.82.
3. Kuhn H. Image noise with film - screen systems: its causes and constituents. - Electromedica, 1983, Bd. 51, N 2, S. 46-51.
4. Gurvič A.M., Katomina R.W., Petrowa I.Ju. et al. Die Erkennbarkeit von Mikrokalk bei der Mammographie mit Vorstärkerfolien. - Radiol. Diagn., 1983, Bd. 24, S. 409-418.
5. Гурвич А.М. Рентгенолюминофоры и рентгеновские экраны. - М.: Атомиздат, 1976.

6. Гурвич А.М. Рентгеновские экраны - развитие, применение и повышение качества. - В кн.: Синтез и технология люминесцентных материалов. Сборн. науч. трудов ВНИИ люминофоров. Ставрополь, 1983, вып. 24, с. 41-52.
7. Morgan R. H. Visual perception in fluoroscopy and Radiography. - Radiology, 1966, vol. 86, p. 403-416.
8. Wolf M. Der Einfluss des Rauschens im Röntgenbild auf die Abbildungsgüte und seine Messung. - Radiol. Diagn., 1979, Bd. 20, S. 479-487.
9. Вольф М., Гурвич А.М., Ильина М.А., Катомина Р.В. A simplified photometric method of measuring granularity spectra for X-ray pictures. - Дефектоскопия, 1982, № 10, с. 8-14.
10. Иванов А.П., Лойко В.А. Оптика фотографического слоя /Под ред. Ю.И. Степанова. - Минск: Наука и техника, 1983.
11. Гурвич А.М., Брочева Н.Д., Катомина Р.В., Маслов Л.А. Сенситометрические характеристики медицинских рентгенографических и флюорографических пленок. - Мед. техника, 1976, № 2, с. 17-22.
12. Румянцев С.В. Радиационная дефектоскопия. - М.: Атомиздат, 1974.
13. Катомина Р.В., Михалев А.А., Томбак М.И., Берлянт Н.Я., Дубовицкая Б.Б., Попова З.П., Рассохин Б.М. О возможности улучшения кальций-вольфраматных усиливающих экранов. - В кн.: Люминесцентные приемники и преобразователи рентгеновского излучения. М., 1974, с. 16-21.
14. Гаркуша В.А. Развитие исследований и производства рентгено- и термолюминофоров. - В кн.: Синтез и технология люминесцентных материалов: Сборн. научн. трудов ВНИИ люминофоров. Ставрополь, 1983, вып. 24, с. 52-59.
15. Гурвич А.М., Брочева Н.Д., Леонова., Салук Л.В., Федорова Ю.В. О фотопленке для флюорографии с электронно-оптическим усилением изображения. - Изв. научн. и прикл. фотогр. и кинематогр., 1983, № 3, с. 84-89.

16. Den Boer J.A. Image formation in diagnostic X-ray equipment. Philips Medical System Division. Eindhoven, 1983.
17. Wilson, R.A. Rare earth screens and silver. - Amer. J. Roentgenol., 1978, vol. 131, p. 926-927.
18. Нечаева С.И., Гурвич А.М., Леонова Н.И., Рожкова Н.И. Об особенностях усиливающих экранов высокой разрешающей способности. - Тезисы докл. У Всесоюзного симп. по люминесцентным приемникам и преобразователям ионизирующего излучения. Таллин, 1985, с. 154-155.
19. Brixner L.H., Chen H. On the structural and luminescent properties of the $M'LnTaO_4$ rare earth tantalate. - J. Electrochem. Soc., 1983, vol. 130, p. 2435-2445.
20. Гурвич А.М. Принципы оптимизации и контроля физико-технических условий рентгенодиагностического исследования. - Вестн. рентгенол., 1984, № 5, с. 75-80.
21. Гурвич А.М., Головкова С.И., Ильина М.А. и др. Физико-химическая природа и процессы образования современных рентгенолюминофоров. - В кн.: Люминесцентные приемники и преобразователи рентгеновского излучения. Новосибирск: Наука, 1985, с. 72-78.
22. Мягкова М.Г., Попова Э.П., Вехтерский Л.А., Кугельмас М.К. Опыт применения высокоэффективных усиливающих экранов фторохлорида бария. - Вестн. рентгенол., 1984, № 45, с. 84-87.
23. Головкова С.И., Гурвич А.М., Кра Г., Бельшмедт К., Бирман Т.А., Котомина Р.В. О влиянии некоторых примесей на свойства $LaOBr-Tb$ люминофора. - Ж. прикл. спектр., 1985, т. 43, № 2, с. 269-273.
24. Бочвар И.А., Гумадова Т.И., Кузнецова А.Г., Томбак М.И. Use of $BaSO_4(Eu)$ thermoluminophore for dose measurement in prolonged exposure. - Атомная энергия, 1982, т. 52, с. 137-138.
25. White W.W., Kimble L.A. Пат. США № 4265862, 25.01.79/05.05.81.
26. Головкова С.И., Гурвич А.М., Бирман Т.А., Михайличенко А.И. и др. Влияние примесей на люминесценцию окси-

бромид лантана. - Тезисы докл. У Всесоюзного симп.
по люминесцентным приемникам и преобразователям по-
низирующего излучения. Таллин. 1985, с. 142-143.

MOST IMPORTANT PROPERTIES OF TUNGSTAN AND
RARE-EARTH INTENSIFYING SCREENS AND THEIR
APPLICATION

A.M. Gurvich, R.V. Katomina, N.I. Leonova,
M.G. Myagkova, M.I. Tombak

S u m m a r y

The influence the properties of intensifying screens and other factors on the threshold contrast by different size of details are analysed. The bounds of the admissible rise of screen efficiency and the sensitivity of the screen-film system for different spatial frequency intervals are determined. Other properties of phosphors and screens determining the possibility of their application in medicine are considered. Special attention is paid to the necessity of eliminating the weak radioluminescence caused by radioactive admixtures, which can be contained, for example, in barium salts.

СВОЙСТВА ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ДЕТЕКТОРОВ ПРИ
РЕГИСТРАЦИИ ИЗЛУЧЕНИЯ В РЕНТГЕНОВСКИХ
ВЫЧИСЛИТЕЛЬНЫХ ТОМОГРАФАХ

В.И. Мухин, Е.П. Тутов, О.П. Федосеева,
А.М. Гурвич, М.А. Ильина, Р.В. Катомина

Сопоставлены свойства поли- и монокристаллических детекторов для вычислительных (компьютерных) томографов. Установлено, что детекторы, изготовленные из поликристаллических экранов, обладают однородностью свойств, достаточно высокой чувствительностью и малым послесвечением. Рассмотрены способы обеспечения высокой степени поглощения такими детекторами рентгеновского излучения. Показана перспективность применения детекторов из $LaOBr-Tb, Yb$ -фосфора (в сочетании с фотумножителем) и из Cd_2O_2S-Tb (в сочетании с фотодиодом).

В последние годы успешно развиваются методы лучевой диагностики, основанные на вычислительной (компьютерной) томографии. Существенное отличие вычислительной томографии от всех ранее применявшихся методов рентгенодиагностики состоит в том, что она дает изображение выбранного слоя объекта, непосредственно не связанное с зарегистрированным излучением, прошедшим через слой, а представляющее результат вычислений, использующих данные регистрации. Вычислительная томография позволяет получить изображение анатомического сечения, свободное от деталей объекта, содержащихся в соседних слоях, причем результаты исследования представляются в количественной форме - в виде распределения величины линейного коэффициента ослабления излучения по визуализируемому сечению. Условием решения вычислительной задачи является линейность характеристик и высокая точность работы всех комплексов, составляющих рентгеновский вычислительный томограф (РВТ), - детектирующего, рентгеновского, электромеханического и др.

Детекторы в РВТ выполняют важнейшие функции измерения интенсивности рентгеновского излучения, которая может изменяться в несколько сот раз в зависимости от химического состава и плотности тканей исследуемого объекта. Следовательно, детекторы должны обладать большим динамическим диапазоном регистрации, существенно большим, чем, например, рентгенографическая пленка. Для получения высококачественного изображения живого органа необходимо, чтобы время облучения слоя было меньше характерного времени движения органа, что приводит к необходимости использования мощных рентгеновских трубок, работающих при анодном напряжении U_a порядка 120 кВ. Эффективная энергия квантов $E_{эф}$ с учетом фильтрации излучения составляет 40–90 кэВ. Указанные условия работы РВТ при используемой геометрии детектор-источник рентгеновского излучения обеспечивают в месте расположения детектора мощность экспозиционной дозы порядка 0,5 Р/с. Поэтому детекторы в РВТ работают в токовом режиме [1]. Набор данных, необходимых для численной реконструкции изображения, осуществляют в РВТ за время около минуты, что достигается при времени накопления заряда на интегрирующей емкости $\tau \approx 2$ мс. В настоящее время в РВТ получили распространение блоки детектирования, содержащие до тысячи детекторов, изготовленных на основе монокристаллических сцинтилляторов в сочетании с ФЭУ.

В первых образцах отечественных РВТ использованы монокристаллы $CsJ-Tl$ и $CsJ-Na$, обладающие значительным послесвечением при времени после прекращения облучения, сравнимом с τ . Это требует специальных мер для коррекции результатов измерений (РС-фильтры, использование вычислительных средств и др.), так как большое послесвечение не позволяет достоверно регистрировать сигнал с низкой интенсивностью в условиях резкого перепада потоков излучения, что снижает информативность изображения. Из-за недостаточно широкой номенклатуры серийно выпускаемых монокристаллических сцинтилляторов затруднен выбор сцинтиллятора с малым послесвечением, отвечающего также другим требованиям работы в РВТ. Кроме того, из монокристаллов трудно изготовить большое количество одинаковых по своим свойствам детекторов.

Это побуждает обратиться к использованию поликристалли-

ческих экранов, служащих для преобразования рентгеновского излучения в рентгенографии, рентгеноскопии и флюорографии. Такие экраны позволяют создавать недорогие, высокочувствительные и однородные по своим свойствам детекторы. Уже имеется опыт успешного применения их в сверхбыстром РВТ для кардиологических исследований [2]. Однако вследствие небольшой толщины экранов и обусловленного этим неполного поглощения рентгеновского излучения, при $E_{эф} = 80-90$ кэВ сказывается отрицательное влияние квантовых флуктуаций. В этих условиях наиболее целесообразно применять люминофоры, обладающие эффективным поглощением рентгеновского излучения. При напряжениях на трубке, используемых в РВТ, элементы средней части периодической системы - от Cd до La - сильнее поглощают излучение, чем тяжелые элементы, поскольку энергии большей части квантов излучения достаточно для вытравливания электронов с K -орбиты атомов Cd и La , но недостаточно для вырывания их с K -орбиты таких элементов, как W [3].

В условиях работы РВТ нами были исследованы свойства поликристаллических детекторов, изготовленных из экранов на основе люминофоров $LaOBr-Tb, Yb$, $LaOBr-Tb$, $LaOSe-Tb$, Gd_2O_3-Tb и $CdWO_4$ с различным содержанием активаторов при поверхностной плотности (нагрузке) люминофора $50-200$ мг/см². Характеристики люминофоров приведены в работе [4]. Для повышения эффективности регистрации рентгеновского излучения был изготовлен детектор толщиной около 1 мм в виде многослойной структуры из набора чередующихся поликристаллических экранов и стеклянных световодов, находящихся в контакте с ФЭУ (рис. 1-а). Дополнительной возможностью повышения эффективности регистрации является расположение такого детектора под углом 45° к направлению падения рентгеновского излучения (α на рис. 1-а). При использовании полупроводниковых фотоприемников в качестве регистратора люминесценции возможно выполнение детекторов в виде "сэндвича", как это показано на рис. 1-б [5, 6]. На рис. 1-в представлена также перспективная конструкция детектора, в которой использован волоконный световод в сочетании с поликристаллическим люминофором.

В таблице I приведены данные о чувствительности и послесвечении поли- и монокристаллических детекторов, полученные

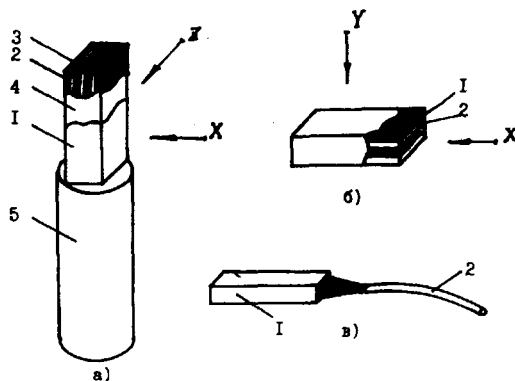


Рис. 1. Схемы поликристаллических детекторов различных типов: а) 1 - корпус, 2 - экраны, 3 - световоды, 4 - алюминиевая фольга, 5 - ФЭУ; б) 1 - экраны, 2 - полупроводниковые фотоприемники; в) 1 - поликристаллический детектор, 2 - волоконный световод. X, Y, Z - направления падения излучения.

Fig. 1. Schematic diagrams of polycrystal detector types: a) 1-body, 2-intensifying screens, 3-light pipes, 4-Al foils, 5-PT; б) 1-intensifying screens, 2-silicon diodes; в) 1-polycrystal detector, 2-fibre light pipe. X, Y, Z - direction of the incidence of X-rays.

при измерении с помощью ФЭУ-60 ($\lambda_{max} = 420$ нм) и диффузионного кремниевого фотодиода ФД-24К ($\lambda_{max} = 950$ нм). Величина чувствительности определяется степенью согласования спектра люминесценции детектора со спектральной чувствительностью фотоприемника, энергетическим выходом люминесценции, условиями светосбора и поглощением рентгеновского излучения детектором [4]. Более высокая чувствительность одиночных поликристаллических детекторов по сравнению со сборными объясняется большими потерями света в случае сборных детекторов. Однако чувствительность последних вполне достаточна для практики, в особенности при использовании LaOBr-Tb, Yb-люми-

нофора. При этом следует учесть, что сборные детекторы поглощают 80% падающего рентгеновского излучения, тогда как остальные поликристаллические детекторы - лишь от 20% до 50%.

При измерениях с фотодиодом ФД-24К высокую чувствительность обнаруживают поликристаллические детекторы на основе $\text{LaOBr} \cdot 5 \cdot 10^{-2} \text{Tb}$ и $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} \cdot 4 \cdot 10^{-3} \text{Tb}$, а также монокристаллические детекторы ZnSe-Te [7] и CsJ-Tl спектры люминесценции которых благоприятны для фотоприемников этого типа. Однако большое послесвечение LaOBr-Tb (при отсутствии Yb) и CsJ-Tl (рис. 2) делает их малоприспособными для эксплуатации в РВГ.

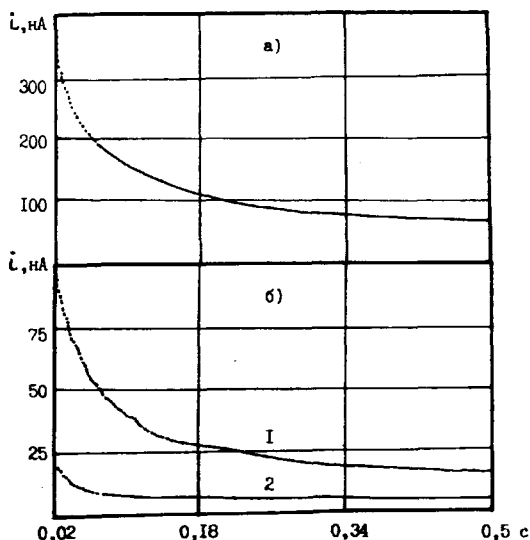


Рис. 2. Затухание сигнала детекторов: а) монокристаллического CsJ-Na б) поликристаллических: 1 - $\text{LaOBr} \cdot 5 \cdot 10^{-2} \text{Tb}$, 2 - $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} \cdot 3 \cdot 10^{-3} \text{Tb}$. Приемник света - ФЭУ-60.

Fig. 2. Afterglow of detectors: а) monocrystal: CsI-Na ; б) polycrystal: 1- $\text{LaOBr} \cdot 5 \cdot 10^{-2} \text{Tb}$, 2- $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} \cdot 3 \cdot 10^{-3} \text{Tb}$. Light receiver-PT-60.

Анализ полученных данных показывает, что поликристаллические детекторы могут успешно использоваться для регистрации излучения в РВТ. В блоках детектирования томографов для головы СРТ-1000 и для всего тела СРТ-5000, выполненных на базе ФЭУ-85 и ФЭУ-60, предпочтительнее использовать сборный детектор из $LaOBr \cdot Tb, Yb$, обеспечивающий высокую эффективность преобразования падающего рентгеновского излучения в световое. Описанная конструкция детектора позволяет обеспечить ширину входной апертуры менее 1 мм, что дает возможность применять такие детекторы в прецизионных РВТ для медицины и промышленности. В проектируемых блоках детектирования РВТ с использованием полупроводниковых фотоприемников могут найти применение также поликристаллические детекторы на основе $Gd_2O_3 \cdot S \cdot Tb$.

Литература

1. Glasgow P.A. Aspects of semiconductor current mode detectors for X-ray computed tomography. e. a. - IEEE Trans. Nucl. Sci., 1981, vol. NS-28, N 1, p. 563-572.
2. Robb R.A., Hoffmann E.A., Sinak L.J., Harris L.D., Ritman E.L. High-speed three-dimensional X-ray computed tomography. - Proc. IEEE, 1983, vol. 76, N 3, p. 308-319.
3. Гурвич А.М. Рентгенолюминофоры и рентгеновские экраны. - М.: Атомиздат, 1976.
4. Gurvič A.M. Люминофоры для рентгенодиагностики. - Radiol. Diagn., 1979, Bd. 20, S. 519-526.
5. Патент (США) № 4362946, нац.кл. 250-483, опублик. 1982 г. приоритет фирмы General Electric Co., США).
6. Патент (США) № 4250385, нац.кл. 250/363, опублик. 1981 г. (приоритет фирмы Siemens, ФРГ).
7. Рыжков В.Д., Стадник П.Е., Яковлев Ю.А. Перспективы развития системы сцинтиллятор-фотодиод. - ПТЭ, 1984, №5, с. 6-16.

Таблица I

Характеристики люминесцентных детекторов рентгеновского излучения
($U_a = 110$ кВ, фильтр 0,2 мм $Cu + I$ мм Al)
Characteristics of X-ray scintillation detectors

Тип детекторов	Люминофор ¹	Нагрузка ² см·см ⁻²	Напряжение питания ³ ФЭУ, В	Чувствительность с ФЭУ-60	Чувствительность с ФД-24К	Последсвечение ⁴ че- рез 20 мс, %
Сборные поликри- сталлические	$LaOBn - 2 \cdot 10^{-3} Tb$	50+70+100+120	700	0,5		0,1
	$1 \cdot 10^{-3} Yb$ $CdWO_4$	60+10+115+160	700	0,2		0,1
Поликри- сталлические	$LaOBn - 2 \cdot 10^{-3} Tb$	80	600	0,9	2,1	0,1
	$1 \cdot 10^{-3} Tb$ $CdWO_4$	200	600	0,9	1,5	0,1
	$Gd_2O_3 - 4 \cdot 10^{-3} Tb$	110	700	1,0	4,5	0,1
	$LaOBn - 5 \cdot 10^{-2} Tb$ $LaOCl - Tb$	95 80	700 700	1,2 1,1	4,0 2,2	0,5 0,1
Монокри- сталлические	$CdWO_4$		700	0,8	1,0	0,1
	$ZnSe - Te$		800	0,9	3,5	0,5
	$CsI - Tl$		600	1,0	4,0	0,7-5,0
	$CsI - Na$		60	0,9		0,5-1,5

¹ Числа перед символами активаторов указывают их концентрацию в г-атом·моль⁻¹.

² Различия в нагрузке люминофора объясняются тем, что использованы главным образом имевшиеся в наличии опытные образцы экранов для рентгенографии и флюорографии.

³ Изменение напряжения питания ФЭУ-60 на 100 В при начальном напряжении 600 В приводит к увеличению сигнала примерно в 3 раза.

⁴ Интенсивность последсвечения измерена после возбуждения в течение 1 с и выражена в % по отношению к интенсивности стационарной люминесценции.

PROPERTIES OF POLYCRYSTALLINE DETECTORS
ON RECORDING THE RADIATION IN X-RAY
COMPUTER TOMOGRAPHS

V.I. Mukhin, E.P. Tutov, O.P. Fedoseeva,
A.M. Gurvich, M.A. Il'ina, R.V. Katomina

S u m m a r y

Some types of X-ray detectors of a special structure have been developed for computer tomography. The detectors prepared from several intensifying screens have high sensitivity and counting efficiency as well as low afterglow. Various scintillation phosphors, poly- and monocrystals, have been considered. The application of LaOBr-Tb, Yb together with a photomultiplier tube and Gd_2O_2S -Tb with a silicon diode is shown to be perspective.

СЦИНТИЛЛЯТОРЫ ДЛЯ КОМПЬЮТЕРНОЙ ТОМОГРАФИИ НА ОСНОВЕ ПЕРСПЕКТИВНЫХ МАТЕРИАЛОВ

В.Д. Рыжиков, О.С. Шапиро, С.М. Игнатов
В.И. Силин, Ф.Е. Гуляев

В томографическом режиме проведены сравнительные исследования сцинтилляторов из монокристаллов цезия иодистого, вольфрамата кадмия и селенида цинка. Энергия рентгеновского излучения составляла 100–120 кэВ, мощность дозы излучения $3,5 \cdot 10^4$ кв/изм·см². Результаты измерений показали, что при использовании кремниевого фотоприемника интегральный световыход сульфида кадмия и селенида цинка составлял 0,5–0,8 световыхода цезия иодистого, послесвечение сульфида кадмия более 1%, а селенида цинка менее 0,1%.

Выявленная с помощью вычислительной томографии возможность визуализации с высокой точностью деталей объектов, ранее недоступных для исследования [1], вызвала подлинный переворот в рентгеноскопии и диагностике заболеваний внутренних органов. Разрешающая способность вычислительного рентгеновского томографа (ВРТ) в значительной степени определяется параметрами детекторов рентгеновского излучения. Поэтому после создания первых приемников излучения на газовых счетчиках в ВРТ стали, в основном, использоваться твердотельные сцинтилляционные детекторы. Из них наибольшее распространение получили сцинтилляторы на основе $\text{CaF}_2(\text{Th})$, не требующие специальной защиты от окружающей среды и обладающие достаточно высокой конверсионной эффективностью.

В то же время требования к параметрам сцинтилляторов для ВРТ имеют определенную специфику. Если в традиционных областях применения основными параметрами являются световыход, время высвечивания (на уровне 1/e), энергетическое разрешение, то в томографии определяющим наряду со световыходом параметром является послесвечение, т.е. эмиссия света после прекращения воздействия излучения. Временной интервал, через

который измеряется послесвечение, зависит от частоты следования зондирующих импульсов и составляет 3–20 мс. Через этот период амплитуда световой вспышки должна составлять не более 0,1% от ее исходного значения. Эта величина диктуется требованием к динамическому диапазону интенсивности (3 порядка), необходимому для эффективного разрешения участков объекта с различной плотностью.

Традиционные сцинтилляторы типа $CsJ(TL)$, $NaJ(TL)$ имеют послесвечение порядка 0,5–5% [2, 3]. Попытки снизить эту величину до требуемого значения дополнительным легированием и отжигами пока оказались безуспешными [3]. Это привело к интенсивному поиску, разработке и использованию в ВРТ новых типов сцинтилляционных материалов с низким послесвечением. К их числу можно отнести в первую очередь германат висмута (BGO) и вольфрамат кадмия ($CdWO_4$), послесвечение которых составляет 0,005 и 0,1–0,2% соответственно. Однако световыход этих сцинтилляторов не превышает 10–40% от значения этого параметра у $CsJ(TL)$.

Нами исследована возможность использования для ВРТ полупроводниковых сцинтилляторов на основе CdS и $ZnSe$ [4, 5] и проведен сравнительный анализ их параметров со свойствами сцинтилляторов $CsJ(TL)$, BGO, $CdWO_4$. Исследования проводились на специально разработанной установке ВРТ с двумя идентичными приемными каналами. В одной из них (опорно) помещался контрольный сцинтиллятор с известным послесвечением BGO или $CdWO_4$. Схема установки приведена на рис. 1. Каждый канал состоит из устройства измерения заряда, аналого-цифрового преобразователя, системы регистрации заряда. Устройство измерения заряда включает преобразователь ток-напряжение с нулевым эффективным входным сопротивлением, интегратор и блок управления интегратором. Преобразователь ток-напряжение представляет собой дифференциальный гибридный усилитель с сопротивлением в цепи обратной связи около 10^7 Ом. Это сопротивление и корректирующая емкость подбирается в зависимости от коэффициента преобразования и собственной емкости детектора для обеспечения требуемой полосы пропускания тракта. Указанная система при собственном шумовом токе $0,5 \cdot 10^{-11}$ А, интегральной нелинейности 0,05% обеспечивала измерение токов

на выходе фотоприемника в диапазоне $5 \cdot 10^{-10}$ – $5 \cdot 10^{-7}$ А, причем в качестве фотоприемника использовался ФЭУ-85 или кремниевый фотодиод.

С выхода системы аналоговый сигнал поступает на вход аналого-цифрового преобразователя, а затем после интегрирования за 10 мс в виде кода подается на систему регистрации, где записывается на магнитную ленту. Информация, записанная на ленту, обрабатывается по разработанной нами программе на ЭВМ ЕС-1033. Наличие опорного канала при использовании идентичных приемных трактов и одного излучателя позволяет исключить погрешность в определении световыхода и послесвечения исследуемого детектора, вносимую нестабильностью приемного тракта и излучателя. Точность измерения этих величин относительно параметров контрольного образца была не хуже $\pm 5\%$.

В качестве излучателя использовалась рентгеновская трубка И4-30 БА 10-150, спектр излучения непрерывный с максимумом энергии при 100 кэВ. Электронный затвор оригинальной конструкции обеспечивает перекрытие пучка в течение 50 мкс. Параметры системы регистрации позволяют проводить измерения послесвечения начиная от 10 мс, а также осуществлять контроль за стабильностью световыхода и послесвечения сцинтилляторов во времени. Мощность дозы излучения на одно измерение составляла около $3,5 \cdot 10^8$ /кв/изм.см². Максимум чувствительности кремниевого фотоприемника приходится на 850 нм, у ФЭУ-85 на 410 нм.

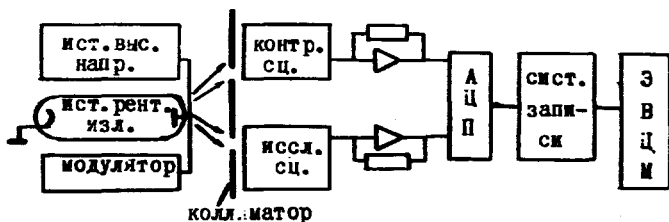


Рис. 1. Блок-схема установки для проведения измерений в томографическом режиме.

Fig. 1. Block diagram of the experimental setup.

Результаты измерений основных характеристик сцинтилляторов на основе $Cs_2(Tl)$, сульфида кадмия и селенида цинка приведены в табл. I и на рис. 2. Для сравнения там же указаны аналогичные параметры ВГО и $CdWO_4$, полученные в [2, 3] и в данной работе.

Таблица I

Основные параметры новых типов сцинтилляторов для ВРТ
Table 1

Main properties of Crystal Scintillators
for XCT Applications

№ п/п	Параметр	$Cs_2(Tl)$	CdS	$ZnSe$	ВГО	$CdWO_4$
1.	Послесвечение, % через 10 мс	0,5-5	0,5-20	0,1	0,005	0,005-0,2
2.	Интегр. с ФЭУ световых отн.ед. с ФД	100	15	20	10	15-40
		100	60-80	50-60	-	-
3.	Максимум излу- чения, нм	550	730-1000	640	480	540
4.	Плотность, г/см ³	4,52	4,82	5,42	7,13	7,9
5.	Эффективный атомн. номер	52	46	33	74	66
6.	Глубина слоя для 90% погл. рент. изл. 150 кэВ, мм	7,1	8,7	14,4	2,3	3,0
7.	Время высвечи- вания, мкс	1,005	0,1-0,3	3-8	0,3	5-9
8.	Энергет. раз- реш. по ¹³⁷ Cs, %	10	15	-	8-12	-

Исследование кинетических характеристик показало, что все исследуемые сцинтилляционные материалы имеют наряду с быстрой и медленную компоненту высвечивания. Это свидетель-

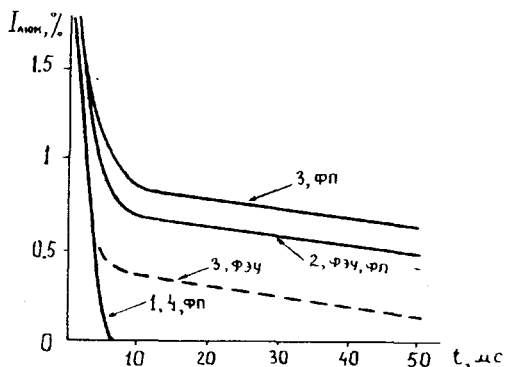


Рис. 2. Послесвечение люминесценции монокристаллов ZnSe, CsI, CdS, CdWO₄ с использованием в качестве приемника света фотоумножителя (ФЭУ) или полупроводникового фотоприемника (ФП).

Fig. 2. Afterglow of ZnSe-(1), CsI(Tl)-(2), CdS-(3) and CdWO₄-(4) monocrystals. A photomultiplier or a photodiode has been used as the light receiver.

существует о наличии нескольких центров излучательной рекомбинации или центров захвата носителей. Даже в наименее светозапасающем материале - В О - при воздействии потоков излучения повышенной интенсивности (энергия излучения 120 кэВ, ток трубки 30 мА) послесвечение возросло от 0,005% до 0,2% через 1,5 мс [2].

С целью выяснить возможность использования новых сцинтилляторов в промышленных РВТ с мощным высокоэнергетическим излучением мы испытали их при воздействии тормозного излучения γ -квантов с энергией 4 МэВ и мощности излучения до 600 Р/мин·м². Послесвечение в этих условиях могло быть измерено через 1 с после прекращения воздействия излучения. Испытания показали, что световыход сцинтилляторов из сульфида кадмия был на уровне, а селенида цинка в 1,5-2 раза ниже, чем у CsI(Na). Все детекторы в процессе 10-минутного облучения

снижали свою чувствительность примерно на 10%. Послеосвещение $\text{CaJ}(\text{Na})$ составляло 0,8%, сульфида кадмия 2,3%, у селенида цинка отсутствовало. В данном случае в качестве контрольного использовался сцинтиллятор $\text{CaJ}(\text{Na})$, так как при воздействии мощных потоков излучения его послеосвещение почти на порядок ниже, чем у $\text{CaJ}(\text{Tl})$.

При облучении сцинтилляторов из сульфида кадмия и селенида цинка в импульсном режиме мощным (до 1,5 кА в импульсе) потоком электронов с энергией 250–300 кэВ, длительностью 30 нс в излучении сцинтилляторов преобладает коротковременная компонента (менее 20 нс). Люминесценция затухает не по экспоненциальному закону, что свидетельствует о бимолекулярном характере рекомбинации.

Наряду с этим сходством наблюдается существенное различие особенностей люминесценции и параметров центров свечения сцинтилляторов из сульфида кадмия и селенида цинка. Так, изменением концентрации активатора и условия термообработки сульфида кадмия можно получить 3 типа сцинтилляторов с существенно различающимися спектральными характеристиками с максимумом спектра излучения на 600 нм, 730 нм и 900–1000 нм [5]. Сцинтилляторы ИК-диапазона обладают повышенным (всегда более 5%) послеосвещением, а коротковолновые (600 нм) малоэффективны при комнатной температуре. Поэтому наибольший интерес для возможного применения в ВРТ представляют сцинтилляторы с максимумом излучения на 730 нм, незначительно (при использовании с фотодиодом) уступающие по техническому световыходу $\text{CaJ}(\text{Tl})$ (табл. I).

Спектр излучения сцинтилляторов из селенида цинка имеет максимум при 640 нм, который образован несколькими налегающими полосами с незначительно разнесенными максимумами. Их удается разрешить при 80К, за счет различия энергий возбуждения [5, 6]. Неожиданным оказалось то, что хотя сульфид кадмия всех типов имеет время высвечивания на порядок и более низкое, чем селенид цинка [5], послеосвещение селенида цинка (табл. I, рис. 2) при всех режимах облучения в 10–100 раз ниже, чем у сульфида кадмия и соизмеримо с послеосвещением В60.

Дополнительную информацию о возможной природе центров

излучения и промежуточного захвата носителей может дать анализ характера изменения кривых термогашения и термостимулированной люминесценции (ТСЛ). Интенсивность люминесценции BGO , $CdWO_4$ [3] и $ZnSe$ в диапазоне 100–400К плавно убывает, причем энергия активации, определяемая по наклону кривых термогашения, не превышает 0,1 эВ. В диапазоне 150–300К термогашение люминесценции $CaF_2(TL)$ и $CdS(Te)$ незначительно, но при повышении температуры более 330–350К интенсивность люминесценции этих материалов резко убывает с энергией активации 0,6–0,8 и 0,4–0,6 эВ соответственно. В ходе зависимости ТСЛ $CaF_2(TL)$ наблюдается несколько максимумов, в том числе при температуре более 450К [3]. Максимумы ТСЛ у сульфида кадмия приходятся на значения температуры 135К, 160К, 180К и 350К. У сцинтилляторов из селенида цинка максимумы ТСЛ соответствуют значениям температуры 108К и 175К.

Приведенные результаты подтверждают высказанное в [3] предположение, что для медленных, более 10 мс процессов характерно высвечивание с глубоких, более 0,4 эВ, центров захвата носителей, максимум ТСЛ которых находится при $T > 200K$. По-видимому, исследование наклона кривых термогашения и положения максимумов ТСЛ может служить хорошим методом поиска и определения сцинтилляционных материалов с малым послесвечением.

Суммируя основные результаты данной работы, можно сказать следующее. Важнейшим параметром используемых в ВРТ сцинтилляторов является послесвечение. Разработчики томографов западных фирм предпочитают использовать сцинтилляторы с малым (в 10–100 раз ниже, чем CaF_2) послесвечением, даже если световыход их при этом существенно снижается. Уменьшение световыхода может быть скомпенсировано повышением требований к электронному тракту, в то время как устранение эффекта накопления заряда за счет остаточного послесвечения вызывает значительные технические трудности.

Среди новых сцинтилляционных материалов с низким уровнем послесвечения наряду с предлагаемыми фирмами "Симменс" (ФРГ), "Харшоу" (США), "Хитачи" (Япония) BGO и $CdWO_4$ [2, 3] перспективными являются сцинтилляторы на основе селенида цинка. Их послесвечение не хуже, чем в BGO , $CdWO_4$, а световыход выше

в 3-7 раз. Повышение степени очистки исходного материала может привести к дальнейшему улучшению их параметров. Сцинтилляторы на основе соединений $AlPbVI$ предпочтительны при использовании в томографах совместно с полупроводниковыми фотоприемниками ввиду хорошего согласования их спектральных характеристик [7].

Литература

1. Hounsfield G.N. Computerized transverse axial scanning (tomography) I: Description of system. - Brit. J. Radiol., 1973, vol. 46., p. 1016.
2. Farukhi M.R. Recent developments in scintillation detectors for X-ray CT and positron CT applications. - IEEE Trans. Nucl. Sci., 1982, vol. NS-29, p. 1237.
3. Grabmaier B.C. Crystal scintillators. - IEEE Trans. Nucl. Sci., 1984, vol. NS-31, p. 372.
4. Рыжиков В.Д., Чайковский Э.Ф. Разработка новых сцинтилляционных материалов на основе соединений $AlPbVI$ с изовалентным активатором. - Изв. АН. СССР. Сер. физ., 1979, т. 43, с. 1150.
5. Рыжиков В.Д. Высокоэффективные полупроводниковые сцинтилляционные детекторы на основе соединений $AlPbVI$: Обзор. инф. Сер. Монокристаллы и особо чистые вещества. - М.: НИИТЭХИМ, 1984, с. 33.
6. Рыжиков В.Д., Селин В.И., Лисецкая Е.К. Красная фотолуминесценция монокристаллов селенида цинка. - В кн.: Монокристаллы, их получение и свойства. Харьков, 1982, вып. 8, с. 46.
7. Рыжиков В.Д., Стадник П.Е., Яковлев Ю.А. К вопросу согласования спектральных характеристик сцинтилляторов и фотодиодов. - ПТЭ, 1982, № 4, с. 57.

SCINTILLATORS FOR COMPUTER TOMOGRAPHY ON THE BASIS
OF PERSPECTIVE MATERIALS

V.D. Ryzhikov, O.S. Shapiro, S.M. Ignatova,
E.I. Silina, F.E. Gulyaeva

S u m m a r y

Some traditional and new crystal scintillators have been investigated. Promising results have been obtained for CdS and ZnSe, in tomographic mode under 100-200 KeV X-ray irradiation, the integrated light output (ILO) of CdS and ZnSe amounts 50-80 % of that of CsI (Tl) and the afterglow in 10 min is more than 1 % for CdS and less than 0.1 % for ZnSe. The conclusion is that under excellent growing and purification conditions both crystals can be used in the screens of computer tomographs.

ИССЛЕДОВАНИЕ КИНЕТИКИ ПОСЛЕСВЕЧЕНИЯ И СПЕКТРАЛЬНЫХ
ХАРАКТЕРИСТИК СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ
ДЛЯ РЕНТГЕНОВСКОЙ ТОМОГРАФИИ

Л.Л. Нагорная, А.Е. Овечкин, С.М. Игнатов, О.С. Шапиро

Исследованы спектры рентгенолюминесценции в области 400–700 нм и кинетика послесвечения в миллисекундном диапазоне (при комнатной температуре) монокристаллов $CdWO_4$ и $ZnWO_4$. Изучено влияние чистоты исходного сырья и отклонений от стехиометрического состава выращенных кристаллов на указанные характеристики. Рассмотрен вопрос спектрального согласования сцинтилляторов с фотоприемниками. Показана перспективность применения вольфраматов кадмия и цинка в рентгеновской томографии.

Твердотельные монокристаллические сцинтилляторы находят широкое применение в качестве преобразователей ионизирующих излучений в различного рода детектирующих устройствах. Наиболее широкое использование получили детекторы на основе активированных щелочногалогидных кристаллов. Однако развитие рентгеновской телевизионной дефектоскопии и рентгеновской вычислительной томографии выдвинуло ряд специальных требований к детекторам, что вызвало необходимость усовершенствования известных сцинтилляторов и поиска новых материалов. Материалы, используемые в рентгеновской томографии наряду с высокой поглощательной способностью к регистрируемому излучению, высокой конверсионной эффективностью, высокой прозрачностью в области собственной люминесценции, должны обладать малым послесвечением и хорошим согласованием со спектральной чувствительностью используемых фотоприемников. Большая величина послесвечения детектора за время порядка следования зондирующих импульсов (3–20 мс) уменьшает динамический

диапазон регистрируемых интенсивностей пучка, что ограничивает величину разрешения частей объекта, имеющих различную плотность, а также уменьшает скорость сканирования пучка, что увеличивает время облучения объекта. Малая конверсионная эффективность и плохое согласование спектральных характеристик пары сцинтиллятор-фотоприемник увеличивают минимально необходимую мощность потока рентгеновского излучения и увеличивают лучевые нагрузки на пациентов. В таблице представлены наиболее важные параметры кристаллов, используемых в качестве детекторов для рентгеновской томографии. В настоящей работе исследованы возможности использования вольфраматов кадмия и цинка в рентгеновской томографии.

Исследованы монокристаллы $CdWO_4$ и $ZnWO_4$, выращенные методом Чохральского с использованием высокочастотного нагрева из шихты как стехиометрического состава, так и с избытком CdO и ZnO 0.5–1.5 вес.%. Исходные окислы имели квалификацию осч и чда. Предварительный синтез шихты производили на воздухе при температуре 1250 К–1300 К в течение 2–3 ч. Кристаллы выращивали в направлении 100 в атмосфере кислорода при избыточном давлении 1 атм. Проведенный нами рентгенорадиометрический анализ по методике, описанной в работе 3, указывает на отклонения от стехиометрии в некоторых кристаллах. Так, в конце монокристалла $CdWO_4$ отклонение от стехиометрического состава в сторону уменьшения CdO составляло 0,5%. По-видимому, это связано с обеднением расплава окисью кадмия в процессе выращивания, т.к. при температуре плавления $CdWO_4$ давление насыщенного паров CdO значительно больше, чем WO_3 .

Кинетику послесвечения измеряли на стенде, который моделировал условия реального томографа. Источником излучения являлась управляемая по сетке рентгеновская трубка (вольфрамовый антикатод, ток 0,5 мА, напряжение 80 кВ), позволяющая получать одиночные импульсы произвольной длительности с временем спада заднего фронта 10^{-5} с. Излучение исследуемого образца регистрировали либо ФЭУ-85, либо кремниевым диодом эпитаксиального типа, сигнал с которых поступал на вход предварительного усилителя (ПУ), выполненного на микросхеме К248 УД 1А. С выхода ПУ сигнал поступал на аналогоцифровой

Таблица

Основные характеристики кристаллических сцинтилляторов
Table

The main characteristics of crystal scintillators

Материал	Максимум излуче- ния (нм)	Время вы- свечива- ния (мкс)	Световыход относитель- но Na_2S-Tl или CaF_2-Tl (%)	Послесвечение в (%) через 3-20 мс	Плот- ность $г/см^3$	Гигроско- пичность	Ссылка
Na_2S-Tl	410	0,23	100	0,5-5/3 мс	3,67	да	I
CaF_2-Na	420	0,63	85	0,5-5/3 мс	4,51	да	I
CaF_2-Tl	565	1-1,5	45	0,5-5/3 мс	4,51	да	I
CaF_2	390	0,005	5	0,003-0,03/6 мс	4,64	да	I
CaF_2-Eu	435	0,94	50	0,3/3 мс	3,19	нет	I
$Bi_4Al_3O_{12}$	480	0,3	12-14	0,1/3 мс	7,13	нет	I
$CaWO_4$	430	3,8	32	1-5/3 мс	6,06	нет	I
$CdS-Tl$	730-1000	0,1-0,3	15 ^(*)	0,5-20/10 мс	4,82	нет	2
$ZnS-Tl$	640	3-8	20 ^(*)	0,1/10 мс	5,42	нет	2
$CdWO_4$	496	8	40 ^(*)	0,02-0,1/20 мс	7,90	нет	авторы
$ZnWO_4$	487	11	20 ^(*)	0,1/20 мс	7,87	нет	авторы

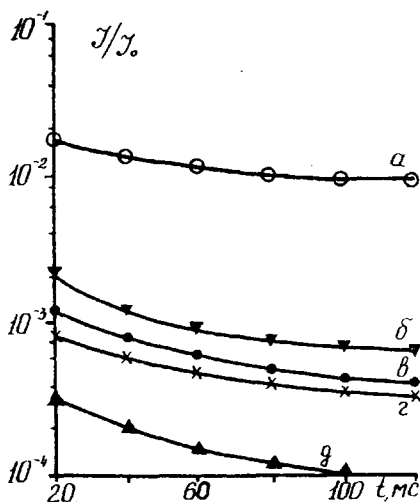


Рис. 1. Кривые затухания интенсивности послесвечения (при $T = 293\text{ K}$): кристаллы CsI-Tl (а); образец CdWO_4 (сырье чда) конец кристалла (б); образец CdWO_4 (сырье осч) начало (д) и конец (г) кристалла; образец ZnWO_4 (сырье чда) (в). Значения коэффициента поглощения в полосах 365 нм (CdWO_4) и 355 нм (ZnWO_4): $6,1\text{ см}^{-1}$ (б); 10 см^{-1} (в); $4,5\text{ см}^{-1}$ (г); $3,5\text{ см}^{-1}$ (д).

Fig. 1. Attenuation curves of afterglow intensity (at $T = 293\text{ K}$): CsI-Tl crystal (a); the sample CdWO_4 (raw material pure for analysis), the bottom of the crystal (b); the sample CdWO_4 (raw material of high purity) the top (g) and bottom (r) of the crystal; the sample ZnWO_4 (b) (raw material pure for analysis). The values of the absorption coefficient in the bands of 365 нм (CdWO_4) and 355 нм (ZnWO_4) are: 6.1 см^{-1} (b); 10 см^{-1} (b); 4.5 см^{-1} (a); 3.5 см^{-1} (g).

преобразователь АД-2 и записывался регистратором УП ДМС-ЕС-9002 на магнитную ленту, а затем обрабатывался ЭЕМ. Система регистрации позволяла фиксировать сигнал послесвечения через каждые 20 мс после прекращения рентгеновского импульса. Точность измерения сигнала послесвечения была не хуже $\pm 0,01\%$.

Кривые послесвечения представлены на рис. 1. Для серийно выпускаемых кристаллов $\text{CaF}_2\text{-Th}$ величина остаточного послесвечения составляла 1-2% от сигнала в момент облучения, что согласуется с данными 4, 5. Величина остаточного послесвечения вольфраматов кадмия и цинка на порядок меньше по сравнению с лучшими образцами $\text{CaF}_2\text{-Th}$ (см. рис. 1). Анализ кинетических кривых показывает, что более длительным послесвечением характеризуются кристаллы, имеющие большое оптическое поглощение в полосах 355 нм (ZrWO_4) и 365 нм (CdWO_4). Установлено, что кристаллы с меньшим содержанием примесей обладают меньшим послесвечением. Кроме того, кристаллы, имеющие нарушения стехиометрического состава, имеют большее остаточное послесвечение (см. рис. 1). Происхождение медленной компоненты послесвечения в настоящее время не установлено. Можно предположить, что указанное послесвечение связано с наличием мелких уровней захвата, образующихся на примесных дефектах, либо связанных с возникновением стехиометрических дефектов. Ранее в работе 6 нами было высказано предположение о влиянии стехиометрических дефектов на центры люминесценции в вольфраматах. Отметим, что несмотря на большое число работ, посвященных люминесценции CdWO_4 экспериментальные данные по этому вопросу носят противоречивый характер. Так, в работах [7-8] наблюдали только одну полосу люминесценции с максимумом 480-500 нм, в то время как в работах [9-10] кроме вышеуказанной полосы наблюдали люминесценцию при 535-550 нм. В связи с этим с целью исследования связи стехиометрического совершенства с центрами люминесценции и его влияния на остаточное послесвечение нами были исследованы кристаллы как строго стехиометрического состава, так и с различной величиной отклонения от стехиометрии в сторону дефицита кадмия. Спектры люминесценции кристаллов исследовали на установке СДЛ-1 при рентгеновском возбуждении (аппарат УРС-002) и при фотовозбуждении (лампа ДРШ-500 и монохроматор

ДМР-4). В спектрах рентгенолюминесценции наблюдали широкие асимметричные полосы. Графическое разложение спектра, снятого при комнатной температуре, позволяет выделить две полосы с максимумами 487 ± 3 нм и 565 ± 7 нм ($ZnWO_4$) и 496 ± 3 нм и 577 ± 7 нм ($CdWO_4$). Для образцов из конца кристалла интенсивность полосы 496 нм уменьшается, а ее асимметрия увеличивается. При фотовозбуждении образцов $CdWO_4$ при комнатной температуре вблизи края фундаментального поглощения (250–313 нм) наблюдали люминесценцию, аналогичную спектру рентгенолюминесценции, а при возбуждении в полосе 365 нм – спектр с максимумом 577 нм, что согласуется с данными работы [11] по спектрам фотовозбуждения "голубой" и "зеленой" полос в вольфраматах. Это обстоятельство, а также наблюдаемая корреляция между увеличением интенсивности полосы люминесценции 577 нм, с одной стороны, и усилением полосы поглощения 365 нм, с другой, при нарушении стехиометрического состава кристалла (образовании дефицита кадмия) указывает на то, что полоса 365 нм связана с центром свечения, ответственным за люминесценцию 577 нм. Проведенные рентгеноструктурные исследования на установке ДРОН-1,0 не обнаружили в областях кристалла с дефицитом кадмия каких-либо фаз кроме $CdWO_4$. Таким образом, отклонения от стехиометрии можно рассматривать как нарушения типа вакансий кадмия. Экспериментально установленная связь усиления полосы 577 нм с уменьшением полосы 496 нм при увеличении дефицита кадмия в кристалле позволяет глубже понять природу центра свечения в $CdWO_4$. Исходя из соображений, высказанных в работах [9, 10] о происхождении полосы 496 нм, можно предположить, что полоса 577 нм связана с переходами в комплексах WO_6 , находящихся в областях кристалла с нарушенной стехиометрией. Этот вывод согласуется с результатами работы [12], в которой наблюдалось усиление полосы 550 нм при искусственном нарушении стехиометрии. Проведенные исследования пока не позволяют высказать окончательного суждения о природе центров захвата, однако можно предположить, что остаточное послесвечение обусловлено стехиометрическими дефектами за счет ионной разупорядоченности в $CdWO_4$. Несмотря на низкий световыход по сравнению со щелочногалогенидными сцинтилляторами, вольфраматы имеют значи-

тельно меньшую величину послесвечения, что в совокупности с механической прочностью и негигроскопичностью делает перспективным применение этих материалов в рентгеновской томографии. Представленные экспериментальные результаты показывают возможность получения кристаллов $CdWO_4$ высокого спонтилляционного качества и указывают пути оптимизации процессов их получения, что и обеспечит широкое их использование в современных томографах.

Литература

1. Каталог Harshaw Chemical Co., 1984, p. 60.
2. Гуляев Ф.Е., Рыжиков В.Д., Игнатов С.М., Шапиро О.С., Силян В.И. Новые детекторы для вычислительной томографии. - В кн.: Тезисы докл. У Всесоюзного симп. по люминесцентным приемникам и преобразователям ионизирующего излучения. Таллин: Изд-во АН ЭССР, 1985, с. 149.
3. Кузнеценко А.В. и др. Методика рентгено-радиометрического анализа кристаллов. - В кн.: Тезисы докл. 33 Совещания по ядерной спектр. и структуре атомного ядра. Л.: Наука, 1983, с. 387.
4. Farukhi M.R. Recent developments in scintillation detectors for X-ray CT and positron CT applications. - IEEE Trans. Nucl. Sci., 1982, vol. NS-29, N 3, p. 1237-1249.
5. Grambaier B.C. Crystal scintillators. - IEEE Trans. Nucl. Sci., 1984, vol. NS-31, N 1, p. 372-376.
6. Овечкин А.Я., Нагорная Л.Л., Майстренко В.И. Исследования люминесценции кристаллов $CdWO_4$ и $ZnWO_4$. - В кн.: XXX Совещание по люминесценции (неорг. материалы): Тез. докл. Ровно, 1984, с. 134.
7. Kröger F.A. Some aspects of the luminescence of solids. New York, 1948, p. 307.
8. Пашковский М.В., Литаренко Л.М., Носенко А.Э., Фурмак С.П., Галита О.Р. Некоторые оптические свойства монокристаллов $CdWO_4$ -N - Вісник ЛДУ, сер. фіз., 1968, № 3, с. 48-53.

9. Lammers M.J., Blasse G., Robertson D.S. The luminescence of cadmium tungstate (CdWO_4). - Phys. Stat. Sol. (a), 1981, vol. 63, N 2, p. 569-572.
10. Батенчук М.М., и др. Природа центров люминесценции монокристаллов $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$. - В кн.: XXX Совещание по люминесценции (неорг. материалы): Тез. докл. Ровно, 1984, с. 133.
- II. Реут Е.Г. Проявление статического эффекта Яна-Теллера в собственной люминесценции кристаллов со структурой шеллита. - Изв. АН. СССР, сер. физ., 1979, 43, № 6, с. II86-II93.
12. Андрейчук В.А., Батенчук М.М., Мороз З.Т., Нагорная Л.Л., Пашковский М.В. Рентгенолюминесценция вольфрамата кадмия, активированного висмутом. - В кн.: Тезисы докл. IV Всесоюзного симп. по люминесцентным приемникам и преобразователям ионизир. излучения. Иркутск, 1982, с. 140.

INVESTIGATION OF THE KINETICS OF THE AFTERGLOW
AND SPECTRAL CHARACTERISTICS OF SCINTILLATING
MATERIALS FOR X-RAY TOMOGRAPHY

L.L. Nagornaya, A.E. Ovechkin, S.M. Ignatov,
O.S. Shapiro

S u m m a r y

Spectra of X-ray luminescence in the region of 400-700 nm and the kinetics of the afterglow in the millisecond range of CdWO_4 and ZnWO_4 single crystals (at room temperature) have been investigated.

The effect of the purity of the raw material and of deviations from the stoichiometric content of the grown crystals on the above characteristics has been studied. The spectral correspondence of scintillators with photodetectors has been considered. The outlook of applying cadmium and zinc wolframates in X-ray tomography is shown.

ЦЕНТРЫ ЗАХВАТА И МЕХАНИЗМЫ ТЕРМОСТИМУЛИРОВАННОЙ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ЭКРАНОВ $\text{CaJ}-\text{Tl}$

Л.П. Смольская, И.А. Парфианович, Т.А. Колесникова,
Ю.М. Карпов, Г.Н. Васильев

Изучена ТСЛ кристаллов $\text{CaJ}-\text{Co}_3$, $\text{CaJ}-\text{Tl}$ и $\text{CaJ}-\text{Tl}, \text{Co}_3$ при 200–450 К. Пики ТСЛ сопоставлены с излучательными аннигиляциями соответственно в парах электронных (F , Tl_2^+ , Tl_2^0) и дырочных (V_2 , $V_2(\text{Tl}^+)$, $(V_2^+)_a$) центров окраски.

Кристаллы $\text{CaJ}-\text{Tl}$ широко известны как сцинтилляторы и экраны, поэтому определение центров захвата и механизмов термостимулированной люминесценции (ТСЛ) в этих кристаллах имеет важное значение.

Проведенные ранее исследования ТСЛ кристаллов CaJ с большим набором "активирующих" и "сопутствующих" примесей в температурном ряду 85–450 К показали наличие сложного спектра уровней захвата [1, 2]: наблюдалось более 15 пиков ТСЛ в зависимости от присутствия и концентрации примеси (табл. I в работе [1]). Установлена природа пиков ТСЛ, обусловленных термическим разрушением Na^0 , Tl^0 , K^0 , Rb^0 , V_k - центров [3, 4]. Природу многих из наблюдаемых пиков определить не удалось. Это обусловлено, очевидно, недостаточной чистотой соли

марки И8-2 ОСЧ. Кристаллы CaJ под действием ионизирующего излучения окрашиваются плохо, что создает дополнительные трудности для определения центров захвата сопоставлением пиков ТСЛ и термической устойчивости центров окраски.

В работе [2] проведены параллельные исследования термостимулированной проводимости (ТСП) и ТСЛ активированных кристаллов CaJ при 85–260 К: в ТСП наблюдаются те же максимумы, что и на кривых ТСЛ, например, в $\text{CaJ}-\text{Tl}$ положение максимумов ТСП (и ТСЛ) 105 К (102 К), 128 К (125 К), 175–180 К. Если интенсивности пика ТСП и ТСЛ при 128 (125) К, связанного с термическим разрушением Tl^0 -центров, условно принять

равными, то интенсивность пика при 105 К в ТСП оказывается слабее более чем в три раза, а для пиков 175–180 К и 230–235 К выше интенсивность ТСП. Общепринято, что ТСП ШПК определяется электронной компонентой тока, так как подвижность электронов намного выше, чем дырок. Однако совпадение максимума пика ТСП при 105 К с пиком ТСП, обусловленным термическим освобождением V_K – центров, очевидно, не является случайным, тем более что в ТСП его интенсивность низка. На этом основании сделан вывод, что в кристаллофосфорах на основе CaJ при низких температурах наблюдается дырочная ТСП. Об участии V_K – центров в ТСП $CaJ-Tl$ сообщается в работе [5]. Аналогично в ТСП кристаллов $CaJ-Na$ с освобождением дырок мы сопоставили V_K – пик при 100 К и пик при 165 К, а для $CaJ-Zn$ и $CaJ-Tl, CO_2$ сделан вывод об электронной природе пика ТСП при 235 К. Поскольку интенсивность "дырочного" [3] пика при 165–170 К увеличивается не только с ростом концентрации ионов натрия, но и индия, европия, наиболее вероятным центром окраски, ответственным за этот пик, будет, очевидно, V_F – центр.

В данной работе исследовалась высокотемпературная ТСП кристаллов CaJ с различной концентрацией таллия и анионов CO_3^{2-} , а также кристаллов с пониженной концентрацией кислородсодержащих примесей. Последние получали следующим образом: в соль CaJ добавляли иодистый аммоний или углерод, нагревали до расплавления при постоянной откачке форвакуумным насосом, затем после охлаждения вбрасывали в активатор.

В рентгенизированных при комнатной температуре кристаллах (50 кВ, 10 мА, W –анткатод) наблюдаются в основном три пика ТСП: с максимумами при 320 К, 370 К и неэлементарный при 420–450 К (рис. 1а), интенсивности которых увеличиваются с ростом концентрации таллия, а первого и третьего – увеличиваются дополнительно с ростом концентрации двухвалентных анионов (табл.). После длительного хранения (см. J –облученный кристалл) в первую очередь опустошаются ловушки, ответственные за I и II пик; а центры окраски, ответственные за наиболее высокотемпературную ТСП, долго не разрушаются. В процессе трехчасовой рентгенизации интенсивность I пика в кристаллах $CaJ-Tl$ начинает уменьшаться уже после 20 минут

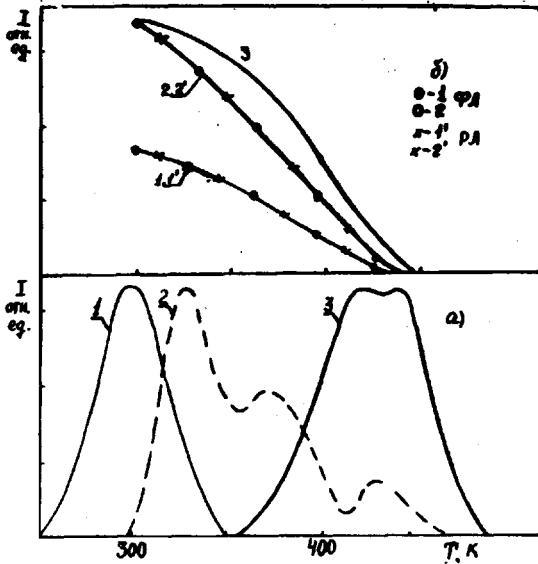


Рис. а - Кривые ТСЛ кристаллов $\text{CsI} - 0,05 \text{ вес. } \% \text{ Ca}_2\text{CO}_3$ (1), $\text{CsI} - 0,002 \text{ вес. } \% \text{ TlI}$ (2) и $\text{CsI} - 0,2 \text{ вес. } \% \text{ TlI} - 0,3 \text{ вес. } \% \text{ Ca}_2\text{CO}_3$ (3) после рентгенизации (1, 2) и γ -облучения (3) при 200 К (1) и 300 К (2, 3) дозой $10, 0,25$ и $2,58 \times 10^7$ Кл/кг, соответственно.

б - Кривые температурного тушения ФЛ (1, 2, 3) и РЛ (1, 2) кристаллов $\text{CsI} - 0,2 \text{ вес. } \% \text{ TlI}$ (1, 1'), $\text{CsI} - 0,002 \text{ вес. } \% \text{ TlI}$ (2, 2') и $\text{CsI} - 0,2 \text{ вес. } \% \text{ TlI} - 0,3 \text{ вес. } \% \text{ Ca}_2\text{CO}_3$ для изл.: = 570 нм (1, 1', 2, 2') и 630 нм (3).

Fig. a) TSL of $\text{CsI} - 0.05 \text{ Wt}\% \text{ Ca}_2\text{CO}_3$ (1), $\text{CsI} - 0.002 \text{ Wt}\% \text{ TlI}$ (2), and $\text{CsI} - \text{TlI} - \text{Ca}_2\text{CO}_3$ (3) after X- (1, 2) and γ -irradiation (3) with a 10, 0.25 and $2.58 \cdot 10^7$ G/kg dose, respectively. Irradiation temperature 200 K (1) and 300 K (2, 3).

b) Thermal quenching of photo- (1, 2, 3) and X-ray (1, 2) luminescence of $\text{CsI} - 0.2 \text{ Wt}\% \text{ TlI}$ (1, 1'), $\text{CsI} - 0.002 \text{ Wt}\% \text{ TlI}$ (2, 2'), and $\text{CsI} - 0.2 \text{ Wt}\% \text{ Ca}_2\text{CO}_3$ at $T_{\text{irr.}} = 570 \text{ nm}$ (1.1', 2.2') and 630 nm (3).

Таблица
 Интенсивности пиков ТСЛ (в условных единицах) кристаллов
 на основе иодистого цезия, облученных ионизирующей
 радиацией при 300 К

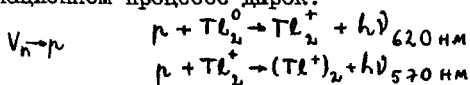
Table
 TSL Peak Intensities of CsI-Based Crystals Irradiated
 at 300 K

Пики ТСЛ	Условия облу- чения	CsI - 0,002 вес.%	CsI - 0,2 вес. % Tl ₂	CsI - 0,2 вес. % Tl ₂ 0,3 вес. % Ca ₂ CO ₃	CsI - 0,2 вес. % Tl ₂ с пониженным содержанием примесей
310-320 К	0,25	600	4000	6000	IIO
360-370 К	Кл/кг	400	1450	460	45
420-450 К		75	100	280	0
310-320 К	4,5	425	800	10000	45
360-370 К	Кл/кг	425	700	170	50
420-450 К		75	150	350	0
420-450 К	2,58 · 10 ⁵ Кл/кг	25	200	330	-

облучения, интенсивности II и III пиков от времени облучения не зависят; в присутствии ионов CO_3^{2-} для I и III пиков наблюдается увеличение интенсивностей ТСЛ. Эти факты свидетельствуют о том, что образованию центров окраски, термическое разрушение которых приводит к появлению I и III пиков ТСЛ, способствуют анионные вакансии, вводимые в решетку для компенсации заряда ионов CO_3^{2-} . Факт быстрого "насыщения" ТСЛ говорит о захвате носителей заряда дорадиационными структурными дефектами. В кристаллах с пониженным содержанием КИ наиболее высокотемпературные пики ТСЛ отсутствуют (табл.).

Известно, что в кристаллах CsI-Tl, особенно с двухвалентными анионами, запасается светосумма под действием света короче 400 нм такой же интенсивности, как и при рентгеновском возбуждении [6], причем и в этих условиях возбуждения в кристаллах с пониженным содержанием КИ наиболее высокотемпературные пики ТСЛ отсутствуют и отсутствует окраска. Окрашивание кристаллов в видимой области [6, 7] обусловлено образованием центров окраски Tl_2^0 и Tl_2^+ . Изучение термической

устойчивости данных центров по спектрам наведенного поглощения и по температурному тушению люминесценции Tl_n^+ центров показало, что при 420 К исчезают Tl_n^+ , а затем при 440 К — Tl_n^0 -центры. Это позволяет утверждать о наличии связи между данными центрами и наиболее высокотемпературными пиками (рис. 1б). Однако появление в пиках ТСЛ при 420–450 К излучения Tl_2^+ и $(Tl^+)_2$ - центров свидетельствует об участии в рекомбинационном процессе дырок:



Здесь V_n — сложный дырочный центр, при термическом разрушении которого освобождается дырка. Предлагается две модели центра: $n(J_3^- \dots J^0)$ — коагулят из ионов и атомов иода, либо $(J_2^0)_a$ — молекула иода в одном анионном узле [7]. Таким образом, высокотемпературные пики ТСЛ кристаллов $CaJ-Tl$ обусловлены термическим разрушением близко расположенных сложных атомарных центров окраски и соответственно дырочных центров типа $n(J_3^- \dots J_n^0)$ или $(J_2^0)_a$.

В ТСЛ $CaJ-Tl$, возбуждаемой ионизирующей радиацией или светом короче 400 нм, могут участвовать носители заряда, локализованные в области микровключений фаз иодистого таллия. Наиболее вероятно, что данным пиком является ТСЛ с максимумом при 360 К. Пик ТСЛ при 320 К можно было бы, по аналогии с $KJ-Tl$ [8], сопоставить с излучательной аннигиляцией попарно расположенных F- и Tl^+ -центров, т.к. уже при 300 К наблюдается спад интенсивности рентгенолюминесценции (РЛ), а введение анионных вакансий с CO_3^{2-} -анионами способствует росту концентрации F-центров. Но в $CaJ-Tl$, в отличие от $KJ-Tl$, фотостимулированной люминесценции (ФСЛ) при возбуждении в F-полосе нам наблюдать не удалось, как и авторам [4]. Отсутствие ФСЛ характерно в CaJ только для таллия, так как для $CaJ-Na$ и $CaJ-Zn$ ФСЛ при оптическом возбуждении в F-полосе наблюдается, соответственно в интервалах температур 85–150 К и 85–370 К [2]. Анализ кривых температурного тушения активаторной фотолуминесценции (ФЛ) и РЛ от 300 К кристаллов $CaJ-Tl$ показывает их идентичность и независимость от концентрации. Характерного для внешнего тушения спада РЛ, обусловленного отходом дырок от Tl^{++} [8–10], не наблюдается.

Таким образом, Tl^{++} в $CaJ-Tl$ либо не создаются [4], либо термически разрушаются при температуре ниже 300 К.

В работе [11] пик ТСЛ при 340 К в γ -облученных кристаллах CaJ сопоставлен с термическим разрушением V_2 (или J_3^-)-центров. Однако в CaJ , по нашему мнению, излучательными аннигиляциями в парах ($F - J_3^-$) обусловлен пик при 300 К (рис.

, кривая I). Интенсивность данного пика растет пропорционально концентрации F-центров в кристаллах $CaJ-CO_2$ и имеет наибольшую интенсивность по сравнению с другими активированными кристаллами. В работе [10] показано, что наряду с V_2 в кристаллах KJ образуются околоприемные V_2 -центры. По-видимому, образование V_2 -центров около таллия или других (пик ТСЛ 340 К в работе [11]) примесей происходит и в кристаллах CaJ , а излучательные аннигиляции в парно расположенных F- и $V_2(Tl^{++})$ -центрах обуславливают пик ТСЛ при 320 К.

Литература

1. Смольская Л.П., Парфианович И.А., Колесникова Т.А., Щепина Л.И., Карпов Ю.М., Васильев Г.Н. Послесвечение экранов на основе иодистого цезия. - В кн.: Материалы III Всесоюз. симп. по ЛШПРИ. Ставрополь, 1980, с. 54-57.
2. Смольская Л.П. Колесникова Т.А., Шапиро Б.М. Спектроскопия уровней захвата в кристаллах иодистого цезия с примесями. - В кн.: Всесоюз. науч. конф. "Физика диэлектриков": Тез. докл. секции "Спектроскопия диэлектриков". Баку, 1982, с. 177-179.
3. Панова А.Н., Ширан Н.В., Шпилинская Л.Ф. Центры захвата в монокристаллах иодистого цезия с примесью натрия. - В кн.: Монокристаллы, скintилляторы и органические люминофоры. Харьков, 1969, вып. 5, ч. I, с. 305-308.
4. Гутан В.Б., Шамовский Л.М. Запасание светосуммы в фосфоре и ее термостимулированное высвечивание. - В кн.: Закономерности распределения примесных центров в ионных кристаллах. М.: ВИМС, 1975, вып. 4, с. 37-44.

5. Barland M., Duval E., Nouaichat A. Migration et recombinaison des porteurs de charge de us KJ-Tl. - J. Phys., 1980, vol. 41, N 1, p. 75.
6. Смольская Л.П., Парфианович И.А., Колесникова Т.А., Карпов Ю.М., Васильев Г.Н., Шапиро Б.М. Факторы, влияющие на характеристики сцинтилляторов и экранов на основе иодистого цезия. - В кн.: Люминесцентные приемники и преобразователи ионизирующего излучения. Новосибирск: Наука, 1985, с. 81-85.
7. Смольская Л.П. Фотохимическое и радиационное окрашивание детекторов ионизирующих излучений на основе иодидов щелочных металлов. - В кн.: У Всесоюз. симп. ЛПШИИ. Таллин, 1985.
8. Смольская Л.П., Парфианович И.А., Шуравлева Е.И. Термостимулированная люминесценция фосфоров на основе UJ . - Опт. и спектр., 1973, т. 35, с. 661-670.
9. Адукер Э.Д. Исследование процессов тушения радиолуминесценции щелочногалогенидных кристаллофосфоров. - В кн.: Радиационная физика. Рига, 1967, с. 7-77.
10. Смольская Л.П. Центры свечения, центры захвата и механизмы рекомбинационной люминесценции кристаллов UJ : Автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук. Иркутск, 1972.
11. Колотилин В.В., Штанько В.И. Собственные дырочные центры окраски в облученных монокристаллах CaJ . - ФТТ, 1984, т. 26, № 1, с. 236-238.

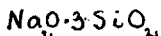
THE CENTRES OF CAPTURE AND TSL MECHANISM
OF CsI-Tl

L.P. Smol'skaya, I.A. Parfianovich,
T.A. Kolesnikova, Yu.M. Karpov,
G.N. Vasil'ev

S u m m a r y

TSL of CsI-Tl, CsI-CO₂, CsI-Tl, CO₂ crystals has been investigated in the temperature interval from 200 to 450 K. TSL peaks are associated with radiative annihilation of the electron (F, Tl₂⁺, Tl₂⁰) and hole (V₂, V₂(Tl⁺), (I₂⁰)_a) colour centre pairs.

АБСОЛЮТНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ В СТЕКЛЕ



В.И. Арбузов, М.Н. Толстой, М.А. Элертс

Работа посвящена идентификации полос поглощения, наводимых УФ светом в активированном и неактивированном модельном стекле $\text{Na}_2\text{O} \cdot 3\text{SiO}_2$ и определению концентраций электронных или дырочных центров окраски (ЦО), сечений поглощения и сил осцилляторов переходов в поглощении ЦО. Селекция ЦО по знаку достигалась введением в стекло редкоземельных доноров (Tb^{3+}) или акцепторов (Eu^{3+}) электронов, легко перезаряжающихся под действием УФ света, и варьированием спектрального состава фотохимически активного света. Перечисленные абсолютные характеристики ЦО определялись по количеству фотоперезаряженных ионов активатора и по спектрам наведенного поглощения.

При облучении щелочносиликатных стекол УФ светом в области края фундаментального поглощения матрицы или ионизирующим излучением наблюдается собственная люминесценция стекла и образуются электронные и дырочные центры окраски (ЦО). Распад ЦО сопровождается рекомбинационной люминесценцией матрицы. Эти обстоятельства позволяют рекомендовать названные стекла к использованию в люминесцентных приемниках излучения и средствах дозиметрии.

Целью настоящей работы было определение концентраций n электронных и дырочных ЦО, сечений поглощения σ и сил осцилляторов f переходов в поглощении ЦО, возникающих в модельном стекле состава $\text{Na}_2\text{O} \cdot 3\text{SiO}_2$ под действием УФ света. В это стекло вводились ионы (Tb^{3+}) или (Eu^{3+}), склонные к перемене валентности. Перезаряжаясь под действием облучения и выступая при этом в качестве доноров (Tb^{3+}) или акцепторов (Eu^{3+}) электронов, эти активаторы должны были способствовать созданию в стекле только электронных или дырочных ЦО. При этом изменение содержания активатора в исходной валентной форме должно было дать возможность определить количество возникающих ЦО.

Исследуемые стекла синтезировались по методике, близкой к описанной в [1]. Облучение образцов производилось УФ светом или в полосу $f-d$ поглощения Tb^{3+} в области 5.5 эВ, в которой ионизуются ионы Tb^{3+} , но почти не создаются свободные электроны и дырки в матрице стекла, или в край фундаментального поглощения матрицы в области 6.0 эВ, в которой генерируются электроны и дырки в матрице стекла (стекла с Eu^{3+}).

Характеристики электронных ЦО. Квант света с $h\nu = 5.5$ эВ возбуждает ионы Tb^{3+} на уровне конфигурации $4f^7 5d$ которые в исследуемом стекле находятся выше границы подвижности электронов [2]. При этом часть ионов активатора может ионизоваться, а оторванные электроны — локализоваться на центрах захвата. Таким образом, в стекле с Tb^{3+} при облучении УФ светом в полосу $f-d$ поглощения активатора должны возникать только ионы Tb^{4+} и электронные ЦО: распадающиеся при 293 К за несколько минут E_2^- -центры, поглощающие свет в области 2.1 эВ, и стабильные E_4^- -центры с полосой поглощения вблизи 5.4 эВ [3]. Электронным ЦО ранее приписывалась также полоса поглощения в районе 4.1 эВ [3], однако, в [4] было показано, что эта полоса является дырочной.

На рис. 1, а (кривая 1) представлен спектр наведенного поглощения (НП) стекла $Na_2O \cdot 3SiO_2$ с 0.22 мол.% Tb_2O_3 , измеренный через 10 минут после прекращения 10-минутного облучения при 293 К. Спектр НП разложен на составляющие компоненты (кривые 2-4). Несимметричная полоса с $h\nu_{max} \approx 2.1$ эВ (кривая 2) характеризует остаток поглощения E_2^- -центров, основная часть которых к моменту регистрации спектра НП уже распалась (от кривой 7 до кривой 2). Полоса 5.36 эВ обусловлена поглощением собственных ЦО E_4^- : она наблюдается и в спектре НП неактивированного стекла. Полоса 3.85 эВ не может быть приписана собственным ЦО матрицы, т.к. она не наводится УФ светом в неактивированном стекле.

Появление полос НП 2.1, 2.85 и 5.36 эВ сопровождается просветлением стекла в полосе $f-d$ поглощения Tb^{3+} . Это просветление свидетельствует об уменьшении числа ионов Tb^{3+} за счет их фотоперезарядки и представлено в спектре НП на рис. 1, а в виде провала в области 5.5 эВ. По полуширине и

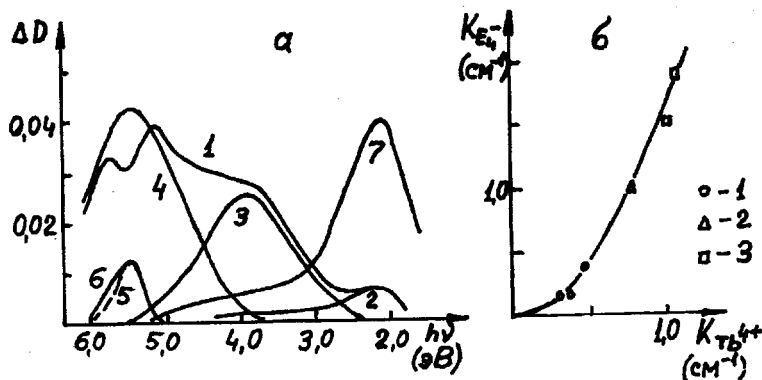


Рис. I. Спектр наведенного поглощения в стекле $\text{Na}_2\text{O} \cdot 3\text{SiO}_2$ с тербием. а). Разложение спектра НИ на составляющие компоненты: I - экспериментальный спектр; 2 - полоса нераспавшихся нестабильных ЦО E_2^- ; 3 - полоса, приписываемая ионам Tb^{4+} ; 4 - полоса ЦО E_4^- ; 5 - спектральная зависимость разности кривых 4 и I - просветление полосы 5.5 эВ ионов Tb^{3+} ; 6 - полоса поглощения Tb^{3+} , нормированная к кривой 5; 7 - спектр поглощения распавшихся нестабильных ЦО E_2^- . б). Соотношение поглощения в полосах ЦО E_4^- и Tb^{4+} при разных концентрациях Tb_2O_3 , мол. %: 0.011 (I); 0.10 (2); 0.22 (3).

Fig. 1. The induced absorption spectra of $\text{Na}_2\text{O} \cdot 3\text{SiO}_2$ glass doped with terbium: a) 1 - experimental spectrum; computer simulation; 2 - absorption band of the nondecayed unstable colour centres (CC) E_2^- ; 3 - absorption band attributed to Tb^{4+} ions; 4 - absorption band of CC E_4^- ; 5 - differential spectra of curves 4 and 1 - coating of the 5.5 eV absorption band of Tb^{3+} ions; 6 - Tb^{3+} absorption band, normalized to curve 5; 7 - spectra of the decayed absorption of unstable CC E_2^- ; b) Intensity of the absorption band of CC E_4^- versus the absorption of Tb^{4+} at various concentrations of Tb_2O_3 , mol. %: 0.011 (1); 0.10 (2); 0.22 (3).

положению максимума спектр просветления (кривая 5) совпадает с нормированным по амплитуде спектром поглощения Tb^{3+} (кривая 6). Эти обстоятельства позволяют приписать полосу 3.85 эВ в облученном стекле с Tb^{3+} ионам Tb^{4+} , которые возникают за счет фотоионизации Tb^{3+} .

Определив степень перезарядки P ионов Tb^{3+} как отношение величины просветления $\Delta d_{Tb^{3+}}$ к исходной оптической плотности стекла $d_{Tb^{3+}}$ в полосе 5.5 эВ и зная количество $n_{Tb^{3+}}$ ионов Tb^{3+} в единице объема, можно вычислить количество возникающих ионов Tb^{4+} , их сечение поглощения $\sigma_{Tb^{4+}}$ и силу осцилляторов переходов $f_{Tb^{4+}}$ в полосе 3.85 эВ:

$$n_{Tb^{4+}} = \Delta n_{Tb^{3+}} = P \cdot n_{Tb^{3+}}, \quad (1)$$

$$\sigma_{Tb^{4+}} = \frac{2.3 K_{Tb^{4+}}(\nu_{max})}{n_{Tb^{4+}}}, \quad (2)$$

$$f_{Tb^{4+}} = \frac{mc^2}{16e^2} \frac{9n}{(n^2-1)^2} \frac{2.3}{n_{Tb^{4+}}} \int K_{Tb^{4+}}(\nu) d\nu, \quad (3)$$

где $K_{Tb^{4+}}(\nu_{max})$ - десятичный показатель поглощения в максимуме полосы 3.85 эВ ($\nu = 31400 \text{ см}^{-1}$);

$n = 1.50$ - показатель преломления стекла;

m - масса электрона;

c - скорость света;

e - заряд электрона. Для контуров Гаусса $\int K(\nu) d\nu$ можно заменить на $K(\nu_{max}) \cdot U$, где U - полуширина полосы.

Наличие нестабильного поглощения в области 3.85 эВ (см. кривые 7 и 2 на рис. 1,а) обусловлено рекомбинацией электронов, термоактивационным путем высвобождающихся из ЦО E_2^+ , с ионами Tb^{4+} . Это позволяет определить количество распавшихся ЦО E_2^+ по изменению поглощения ионов Tb^{4+} в полосе 3.85 эВ:

$$\Delta n_{\epsilon_2^-} = \Delta n_{Tb^{4+}} = \frac{\Delta K_{Tb^{4+}}(\nu_{max}) \cdot 2.3}{\bar{\sigma}_{Tb^{4+}}}, \quad (4)$$

а также $\bar{\sigma}_{\epsilon_2^-}$ и $f_{\epsilon_2^-}$ (см. табл.), подставив в (2) и (3) величины $n_{\epsilon_2^-}$, $K_{\epsilon_2^-}(\nu_{max})$ при $\nu_{max} = 16950 \text{ см}^{-1}$, определяемые из спектра НИ на рис. 1, а.

После распада ЦО E_2^- можно считать, что количество стабильных ЦО E_4^- пропорционально оставшемуся количеству ионов Tb^{4+} . Однако оторванные от Tb^{3+} электроны захватываются не только ловушками матрицы, но и ионами Fe^{3+} [4], которые содержатся в исследуемых стеклах на уровне $1 \cdot 10^{-4}$ мас. % ($2.4 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$) и которые поглощают свет в той же области, что и ЦО E_4^- . При малых концентрациях Tb^{3+} поглощение ЦО E_4^- занижено как из-за перехвата части электронов ионами Fe^{3+} , так и вследствие просветления полосы поглощения Fe^{3+} в области 5.5 эВ при фотоперезарядке Fe^{3+} . Влияние железа на рост поглощения ЦО E_4^- становится незначительным, лишь когда концентрация тербия намного превышает концентрацию железа. При этом зависимость $K_{E_4^-}$ от $K_{Tb^{4+}}$ выходит на линейный участок (рис. 1, б), для которого будет справедливо соотношение:

$$\bar{\sigma}_{E_4^-} = \bar{\sigma}_{Tb^{4+}} \frac{dK_{E_4^-}}{dK_{Tb^{4+}}}, \quad (5)$$

Зная $\bar{\sigma}_{E_4^-}$ и определив из рис. 1, а $K_{E_4^-}(\nu_{max})$ можно вычислить значения $n_{E_4^-}$ и $f_{E_4^-}$ (см. табл.).

Полученное нами значение $\bar{\sigma}_{E_4^-} = (8.8 \pm 1.5) \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$ близко к значению $\bar{\sigma}_{E_4^-}$, полученному в [6], но в 2.9 раза меньше величины $\bar{\sigma}$, определенной авторами [4] в экспериментах с γ -облученными стеклами. Причины расхождений результатов определения $\bar{\sigma}_{E_4^-}$ при разных видах облучения требуют дальнейших исследований.

Характеристики дночных ЦО. На рис. 2 приведен спектр НИ стекла $Na_2O \cdot 3 SiO_2$ с 0.084 мол. % Eu_2O_3 облученного в течение 20 минут светом с $h\nu = 6.0$ эВ. Длинноволновая часть этого спектра (1.5–3.5 эВ) хорошо аппроксимируется контурами

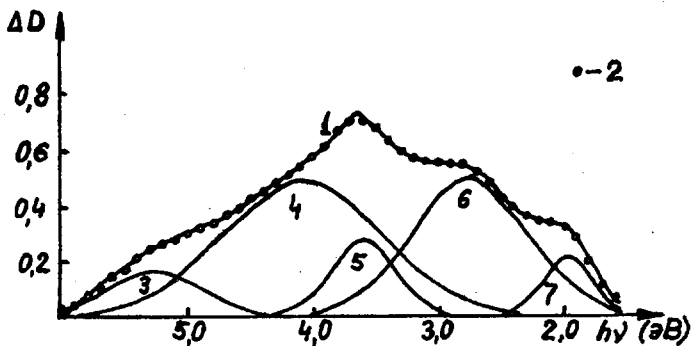


Рис.2. Спектр наведенного поглощения стекла $\text{Na}_2\text{O} \cdot 3\text{SiO}_2$ с европием. Разложение на составляющие компоненты: 1 - экспериментальный спектр; 2 - расчетные точки при разложении спектра НП на: 3 - полосу поглощения Eu^{2+} ; 4 - полосу ЦО H_4^+ ; 5 - полосу поглощения Eu^{2+} ; 6 - полосу ЦО H_2^+ ; 7 - полосу ЦО H_3^+ .

Fig.2. The induced absorption spectra of $\text{Na}_2\text{O} \cdot 3\text{SiO}_2$ glass doped with europium. 1 - experimental spectrum; 2 - computersimulated points by Gaussians; 3 - Eu^{2+} absorption band; 4 - CC H_4^+ absorption band; 5 - Eu^{2+} absorption band; 6 - CC H_2^+ absorption band; 7 - CC H_3^+ absorption band.

полос дырочных ЦО H_2^- (2.8 эВ) и H_3^- (2.0 эВ) [3]. Хотя полоса 4.1 эВ ЦО H_4^- (наше обозначение вместо E_3^- 7) не проявляется в спектре НП стекла с Eu^{3+} в виде отдельного максимума, она все же учитывалась при разложении спектра НП в области 3.5-6.0 эВ на составляющие компоненты (кружочки на рис. 2). В результате такого разложения в спектре НП проявляются две дополнительные интенсивные полосы с максимумами вблизи 3.61 и 5.14 эВ (рис. 2, кривые 5 и 3). Поскольку близкие по положению полосы обнаруживаются в спектре возбуждения люминесценции ионов Eu^{2+} , имеющих в необлученном стекле в виде

примеси, то это позволяет отнести выделенные полосы 3.6I и 5.14 эВ к поглощению ионов Eu^{2+} , полученных за счет перезарядки Eu^{3+} .

Попытка разложить спектр НИ в области 3.5–6.0 эВ только на две полосы Eu^{2+} в предположении, что полоса 4.1 эВ – электронная дает результаты, хуже описывающие экспериментальный спектр НИ.

Поскольку ион Eu^{3+} может захватить только один электрон, то каждому фотовосстановленному иону Eu^{2+} соответствует не более одного дырочного ЦО. Количество $n_{Eu^{2+}}$ перезарядившихся ионов активатора можно определить по спектру НИ и по коэффициенту удельного поглощения Eu^{2+} [8]. Далее, определив из спектра НИ коэффициент $K_{Eu^{2+}}$ в полосе 3.6I эВ и зная $n_{Eu^{2+}}$, можно вычислить сечение $\sigma_{Eu^{2+}}$ поглощения Eu^{2+} . Кроме того, поскольку $n_{Eu^{2+}} = n_{H^+}$, где n_{H^+} – концентрация возникших дырочных центров, то

$$n_{H^+} = \frac{2.3 K_{Eu^{2+}} + (3.61 \text{ эВ})}{\sigma_{Eu^{2+}}} \quad (6)$$

Если принять точку зрения авторов [4, 9], что полосы 2.0, 2.8 и 4.1 эВ обусловлены разными оптическими переходами в одном дырочном центре, то для такого центра

$$\sigma_{H^+} = \frac{2.3 K_{H^+} (2.76 \text{ эВ})}{n_{H^+}} = \frac{K_{H^+} (2.76 \text{ эВ})}{K_{Eu^{2+}} + (3.61 \text{ эВ})} \sigma_{Eu^{2+}}, \quad (7)$$

где $K_{H^+} + (2.76 \text{ эВ})$ – десятичный показатель поглощения в максимуме полосы 2.8 эВ.

Результаты определения абсолютных характеристик дырочных ЦО приведены в таблице. Полученные нами для стекол, облученных УФ светом, значения σ_{H^+} совпадают со значениями, полученными в [4] для стекла с Fe^{3+} при γ -облучении. В [10] для стекла с церием, облученного рентгеновскими лучами, получено $\sigma_{H^+} = 4.5 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$. Однако, если учесть количество Fe^{3+} в образцах (обработав спектр поглощения неактивированного стекла, приведенный в [10]), то величина σ_{H^+} окажется близкой к значениям σ_{H^+} в [10] и в настоящей работе. Это позво-

Таблица

Абсолютные характеристики собственных и примесных центров окраски в стекле
 Absolute characteristics of intrinsic and impurity colour centres in sodium
 trisilicate glass

Концентрация активатора (C, мол.% или n , 10^{18} cm^{-3})							
$C_{\text{Tb}_2\text{O}_3}$	$n_{\text{Tb}^{3+}}$	$\Delta n_{\text{Tb}^{3+}} = n_{\text{Tb}^{4+}}$	$C_{\text{Eu}_2\text{O}_3}$	$n_{\text{Eu}^{3+}}$	$\Delta n_{\text{Eu}^{3+}} = n_{\text{Eu}^{2+}}$		
0.220	120	0.84 ± 0.35	0.086	42	0.29 ± 0.01		
Сечение поглощения (σ , 10^{-18} cm^2)							
$\sigma_{\text{Tb}^{3+}}$	$\sigma_{\text{Tb}^{4+}}$	$\sigma_{\text{E}_2^-}$	$\sigma_{\text{E}_4^-}$	$\sigma_{\text{Eu}^{2+}}$	σ_{H^+}		
(5.5 эВ)	(3.85 эВ)	(2.1 эВ)	(5.36 эВ)	(3.61 эВ)	(2.76 эВ)		
1.2	3.5 ± 0.6	22 ± 3	8.8 ± 1.5	5.3	7.7 ± 1.1		
Сила осцилляторов переходов в поглощении (f , 10^{-2})							
$f_{\text{Tb}^{3+}}$	$f_{\text{Tb}^{4+}}$	$f_{\text{E}_2^-}$	$f_{\text{E}_4^-}$	$f_{\text{Eu}^{2+}}$	$f_{\text{H}_3^+}$	$f_{\text{H}_2^+}$	$f_{\text{H}_4^+}$
(5.5 эВ)	(3.85 эВ)	(2.1 эВ)	(5.36 эВ)	(3.61 эВ)	(1.97 эВ)	(2.76 эВ)	(4.1 эВ)
0.26	3.3 ± 0.6	15 ± 2	4.4 ± 0.9	2.1 ± 0.3	1.1 ± 0.2	5.5 ± 0.8	7.2 ± 1.1

ляет высказать предположение, что при $УФ$ - рентгеновском и γ -облучении в натриевосиликатном стекле образуются одни и те же дырочные ЦО. Что же касается электронных ЦО, то, по-видимому, их полосы в области 5.4 эВ имеют различную природу при $УФ$ - и γ -облучении.

Литература

1. Глебов Л.Б., Попова Л.Б., Толстой М.П., Русан В.В. Образование нестабильных центров окраски в силикатном стекле или $УФ$ облучении. - Физ. и хим. стекла, 1976, т. 2, № 6, с. 569-571.
2. Арбузов В.И., Витол И.К., Кангро А.Р., Попова Л.Б., Толстой М.Н. Туннельная рекомбинационная люминесценция стекла состава $Na_2O \cdot 3SiO_2$, активированного Tb^{3+} . - Физ. и хим. стекла, 1982, т. 8, № 1, с. 82-87.
3. Mackey J.H., Smith H.L., Halperin A. Optical studies in X-irradiated high-purity sodium silicate glasses. - J. Phys. Chem. Solids, 1966, vol. 27, N 11/12, p. 1759-1772.
4. Глебов Л.Б., Докучаев В.Г., Петровский Г.Т. Спектры поглощения силикатных стекол высокой чистоты с переменным содержанием Fe^{3+} , окрашенных γ -излучением. - Физ. и хим. стекла, 1985, т. 11, № 1, с. 79-86.
5. Низовцев В.В., Шимменцева Э.В., Солинов В.Ф. Щелочно-силикатное восстановленное стекло как фотохромный материал. - Изв. АН СССР. Сер. неорганич. матер., 1976, т. 12, № 4, с. 747-750.
6. Stroud J.S. Photoionization of Ce^{3+} in glass. - J. Chem. Phys., 1961, vol. 35, N 3, p. 844-850.
7. Mackey J.H., Smith H.L., Nahum, I. Competitive trapping in sodium silicate glasses doped with Eu^{3+} . - J. Phys. Chem. Solids., 1966, vol. 27, N 11/12, p. 1773-1782.
8. Swarts E.L., Pressau J.P. Phototropy of reduced silicate glass containing the 570 m color center. - JOSA, 1965, vol. 48, N 7, p. 33-338.

9. Глебов Л.Б., Докучев В.Г., Петровский Г.Т. Центры окраски в особочистых силикатных стеклах, содержащих Fe^{3+} . Тезисы докл. У Всесоюзного сов. по радиационной физике и химии ионных кристаллов. Рига-Салдпилс, 1983, ч. II, с. 359-360.
10. Stroud J.S. Color centers in a cerium-containing silicate glass. - J. Chem. Phys., 1962, vol. 37, N 4, p. 836-841.

ABSOLUTE CHARACTERISTICS OF COLOUR CENTRES
IN $Na_2O \cdot 3SiO_2$ GLASS

V.I. Arbuzov, M.N. Tolstoj, M.A. Elerts

S u m m a r y

Absorption spectra of intrinsic and impurity colour centres (CC), induced by UV irradiation in undoped and terbium- or europium-doped $Na_2 \cdot 3SiO_2$ model glasses, have been studied. The UV light in the f-d absorption band of Tb^{3+} (5.5 eV) ionizes a part of terbium ions and absorption bands of intrinsic electron CC and photoionized Tb^{4+} ions are induced in terbium-doped glass. On irradiation in the fundamental absorption region of the matrix in Eu^{3+} -doped glass (6.0 eV) a part of Eu^{3+} ions is reduced to a valence state Eu^{2+} and the absorption bands of intrinsic hole CC and photoreduced Eu^{2+} ions are induced in the glass. By means of computer simulation the absorption bands of photorecharged impurity CC have been identified. Concentrations of electron and hole CC, their absorption cross sections and oscillator strength of CC absorption bands have been computed by the concentration of photorecharged ions and optical density of the induced absorption spectra.

**ЛЮМИНЕСЦЕНТНЫЕ ПРИЕМНИКИ И ПРЕОБРАЗОВАТЕЛИ
КОНИСЕРВИРОВАННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ.**
Материалы симпозиума.
На русском языке.
Резюме на английском языке.
Тартуский государственный университет.
ЗССР, 202400, г.Тарту, ул.Линкооли, 18.
Ответственный редактор И. Яак.
Корректоры И. Пауска, Э. Вайк.
Подписано к печати 17.12.1986.
ИВ 08072.
Формат 60x84/16.
Бумага ротаторная.
Машиннопись. Ротапринт.
Условно-печатных листов 10,23.
Учетно-издательских листов 9,63. Печатных листов II,0.
Тираж 250.
Заказ № 1048.
Цена I руб. 40 коп.
Типография ТТУ, ЗССР, 202400, г.Тарту, ул.Тийги, 78.