

15

Высокотемпературная термолюминесценция анионодефицитного корунда и возможности его применения в высокодозной дозиметрии

© А.И. Сурдо^{1,2}, И.И. Мильман², Р.М. Абашев¹, М.И. Власов¹

¹ Институт промышленной экологии УрО РАН, Екатеринбург

² Уральский федеральный университет

имени первого Президента России Б.Н. Ельцина, Екатеринбург

E-mail: surdo@ecko.uran.ru

Поступило в Редакцию 28 июля 2014 г.

Приведены результаты исследований термолюминесценции (ТЛ) монокристаллов анионодефицитного корунда ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$) и детекторов ТЛД-500 на их основе, облученных импульсными рентгеновскими и электронными излучениями в широком диапазоне доз D , импульсных мощностей доз P_p и температур. При $D = 0.05\text{--}150$ Gy проведено сравнение откликов ТЛ у $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ для непрерывного и импульсного рентгеновского облучения. В отличие от непрерывного при импульсном облучении с $P_p \geq 6 \cdot 10^6$ Gy/s зарегистрирован линейный рост откликов ТЛ от D в основном и „хромовом“ пиках соответственно при 450 и 580 К с уменьшением наклона дозовой зависимости при $D > 2$ Gy для пика 450 К. Обнаружено при облучении большими дозами (> 60 Gy) появление нового пика ТЛ при 830 К и преимущественное перераспределение в него запасенных светосумм. Для отклика в пике ТЛ при 830 К изучена дозовая зависимость, которая линейна в диапазоне сверхбольших доз $10^4\text{--}6 \cdot 10^6$ Gy при $P_p = 2.6 \cdot 10^{11}$ Gy/s.

Расширяющееся применение импульсных рентгеновских и электронных источников микро-, нано- и субнаносекундной длительности в радиационных технологиях, контроле, медицине, а также при изучении быстропротекающих физических и химических процессов требует адекватного выбора средств измерения поглощенной дозы облучения D , получаемой как персоналом, так и облучаемыми изделиями, пациентами, объектами исследования [1–3]. Диапазоны требуемых доз, например для решения задач индивидуальной дозиметрии, составляют $10^{-5}\text{--}10$ Gy,

радиационных технологий с учетом типа излучений и энергий — $10-10^7$ Gy [1,2]. Важно, что использование в импульсных радиационных полях электронных дозиметров затруднено из-за сильных электромагнитных помех и значительных импульсных мощностей доз P_p , составляющих 10^6-10^{11} Gy/s [3]. Поэтому достаточно часто для измерения доз применяют накопительные детекторы, использующие явление термолюминесценции (ТЛ) [3,4]. Для некоторых типов ТЛ-детекторов определены предельные значения D и P_p , выше которых выход ТЛ начинает, как правило, снижаться. В частности, при длительности импульса излучения 100 ns предельные значения D и P_p для детекторов на основе CaF_2 составляют 10 Gy и $10^{10}-10^{11}$ Gy/s, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7-10^3$ Gy и $10^{10}-10^{11}$ Gy/s, $\text{LiF} - 100$ Gy и 10^9 Gy/s [5]. Тем не менее из приведенных данных следует, что указанные типы ТЛ-детекторов не обеспечивают требуемого диапазона измерений доз. Это обстоятельство стимулирует исследования дозиметрических свойств ТЛ-детекторов, используемых, в частности, в индивидуальной дозиметрии, например LiF:Mg, Cu, P , для применения их в области больших и сверхбольших доз [6]. Результаты подобных исследований для детекторов ТЛД-500, изготавливаемых из монокристаллического анионодефицитного корунда ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$), показывают возможность дальнейшего расширения диапазона регистрируемых доз [7-10]. Однако если, например, в [7] отклик ТЛ исследовался в наибольшем из известных числе пиков, но в достаточно узком диапазоне доз — 1-100 Gy, то в [8-10] для получения дозиметрической информации в диапазоне 1.5-800 kGy использовалось только по одному пику. Так, в [8] применялся пик при 380 K, в [9] — 450 K, называемый основным или дозиметрическим, а в [10] — 700 K. Более того, в [7] образцы облучались электронами $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -источника, а в [8-10] — импульсным наносекундным электронным пучком. В результате оказалась не вполне выясненной взаимосвязь выходов ТЛ образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ в основном и других пиках, в том числе неисследованных в [7-10], а также при импульсном и непрерывном облучении в широком диапазоне доз и мощностей доз, включая области, характерные для индивидуальной, аварийной и технологической дозиметрии. Поэтому целью данной работы является сравнительное изучение особенностей ТЛ-свойств анионодефицитных монокристаллов корунда, облученных непрерывным и импульсным рентгеновским и электронным излучением в существенно расширенном диапазоне доз, мощностей доз и температур.

Объектами исследования являлись образцы монокристаллов анионодефицитного корунда диаметром 5 mm и толщиной 1 mm (детекторы ТЛД-500), имеющие концентрацию F^+ - и F^- -центров (анионные вакансии с одним и двумя электронами соответственно) $\sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ и обладающие средней чувствительностью к облучению. Они облучались непрерывным и импульсным рентгеновским излучениями, генерируемыми соответственно аппаратами Eclipse IV Lab (Rh-анод, 40 kV, 40 μ A) и „Арина-3“ (трубка ИМА5-320Д, 200 kV, $f = 5 \text{ Hz}$). Максимальная доза, получаемая образцом за один импульс „Арины-3“ ($\tau_p = 10 \text{ ns}$), составляла 0.26 Gy, что соответствовало $P_p \approx 2.6 \cdot 10^7 \text{ Gy/s}$. В высокодозных экспериментах использовались электронные пучки аппарата „Арина-02“ (трубка ИМА2-150Э, 180 kV, $\tau_p = 10 \text{ ns}$, 10 Hz) и ускорителя УЭЛР-10-15С ($E_e = 10 \text{ MeV}$, $I_{a_max} = 700 \mu\text{A}$, $\tau_p = 10 \mu\text{s}$, $f = 48 \text{ Hz}$) с частотой сканирования 3 Hz. Максимальная доза, получаемая образцом за один импульс „Арины-02“, составляла 2.6 kGy, что соответствовало $P_p \approx 2.6 \cdot 10^{11} \text{ Gy/s}$. Аналогичные величины в случае применения ускорителя УЭЛР-10-15С были $D \approx 170 \text{ Gy}$ и $P_p \approx 1.7 \cdot 10^7 \text{ Gy/s}$. Поглощенные дозы и мощности дозы варьировались в диапазонах $10^{-2} - 10^7 \text{ Gy}$ и $10^3 - 2.6 \cdot 10^{11} \text{ Gy/s}$. Дозы из поддиапазонов $10^{-2} - 10^2 \text{ Gy}$ и $5 \cdot 10^3 - 5 \cdot 10^4 \text{ Gy}$ определялись соответственно калиброванными ТЛ-дозиметрами ДПГ-02 на основе LiF и дозиметрическими цветными пленками СО ПД (Ф)Р-5/50. Дозы из поддиапазонов $10^2 - 5 \cdot 10^3 \text{ Gy}$ и $5 \cdot 10^4 - 10^7 \text{ Gy}$ оценивались расчетным путем с учетом дозы, получаемой за один импульс, и количества импульсов.

Кривые ТЛ регистрировались на специальной автоматизированной установке при скорости нагрева 2 K/s [11]. Сигнал ТЛ регистрировался фотоумножителем ФЭУ-142 с пониженной чувствительностью к тепловому излучению нагревателя, максимальная температура которого могла составлять 1200 K. При сравнении выходов ТЛ у образцов, облученных относительно мягким и жестким рентгеновскими излучениями, учитывался их ход с жесткостью [4], а при электронном облучении — пробеги электронов с отличающимися энергиями и соответственно эффективные толщины люминесцирующих слоев. Для полного опустошения основной и глубоких ловушек перед каждым облучением исследуемые образцы отжигались при температуре 1200 K в течение 10 s.

На рис. 1, а (кривые 1–5) представлены кривые ТЛ $I_{TL}(T)$ образца $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$, облученного импульсным рентгеновским излучением

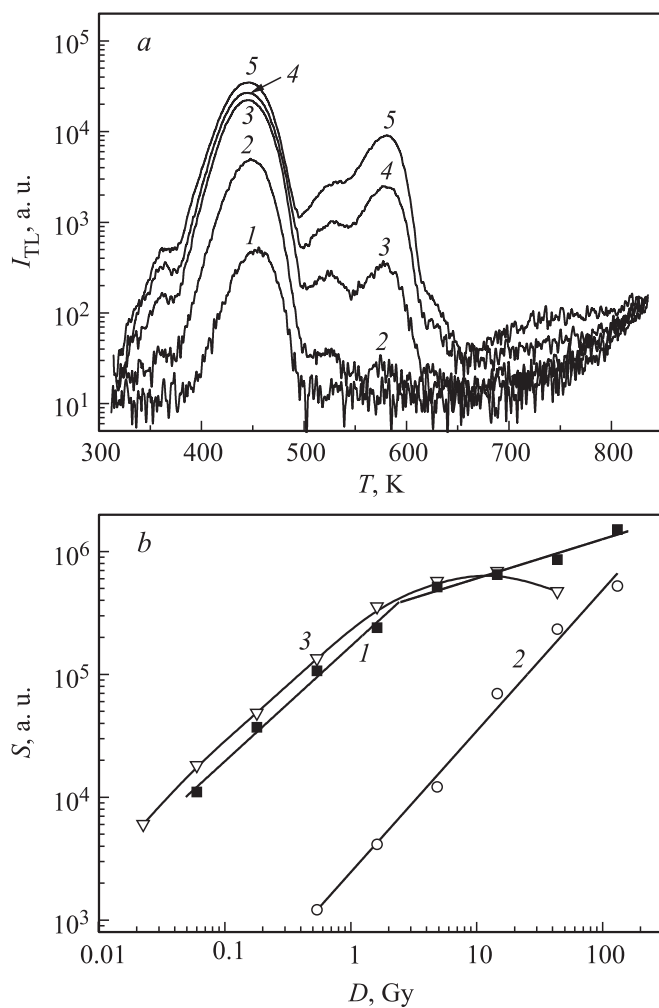


Рис. 1. *a* — кривые ТЛ образца $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$, облученного импульсным рентгеновским излучением с $P_p = 6 \cdot 10^6$ Gy/s и D , Gy: 1 — 0.06, 2 — 0.5, 3 — 5, 4 — 14, 5 — 44; *b* — дозовые зависимости: 1 — $S_{450}(D)$, 2 — $S_{580}(D)$, 3 — $S_{450_const}(D)$.

с $P_p = 6 \cdot 10^6$ Gy/s и отличающимися дозами. Видно (кривые 3–5), что в отличие от непрерывного рентгеновского облучения отклик ТЛ в основном дозиметрическом пике при 450 К продолжает расти в области достаточно больших доз ($D \geq 2$ Gy). Более того, при $D \geq 0.5$ Gy кривые ТЛ видоизменяются (кривые 3–5), наряду с основным пиком при 450 К становится достаточно интенсивным пик при 580 К, обусловленный примесью хрома [12].

На рис. 1, *b* изображены дозовые зависимости светосумм S_{450} (кривая 1) и S_{580} (кривая 2), высвеченных соответственно в пиках при 450 и 580 К при импульсном облучении. Для сравнения на рис. 1, *b* помещена зависимость $S_{450_const}(D)$ (кривая 3), измеренная для пика при 450 К при непрерывном облучении и имеющая насыщение при $D > 1$ Gy, что согласуется с техническими условиями на детектор типа ТЛД-500 [13]. Видно, что $S_{450}(D)$ и $S_{450_const}(D)$ в диапазоне изучаемых доз 0.02–2 Gy мало отличимы и в двойных логарифмических координатах имеют близкий к линейному вид. Аналогичный вид и наклон в диапазоне исследованных доз 0.5–150 Gy имеет зависимость $S_{580}(D)$, причем ее значения существенно уступают подобным для $S_{450}(D)$ и $S_{450_const}(D)$, что вполне объяснимо пониженной чувствительностью используемого фотоумножителя к „хромовому“ свечению с максимумом при 692–694 nm [12]. Из приведенных на рис. 1, *b* данных также можно увидеть, что при $D > 2$ Gy зависимость $S_{450}(D)$ в отличие $S_{450_const}(D)$ не насыщается, а ее наклон уменьшается. Тогда в связи с последним наблюдением можно предположить, что при импульсном облучении $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-}\delta$ с ростом D и P_p и преодолении ими некоторого порога накапливаемая светосумма начнет интенсивно перераспределяться в более высокотемпературные пики.

Поэтому далее были исследованы кривые ТЛ в более широком температурном и дозовом диапазоне при импульсном рентгеновском облучении образцов (рис. 2). При возрастании D от 20 до 570 Gy интенсивность основного пика при 450 К проходит через максимум вблизи $D \approx 200$ Gy, „хромовый“ пик при 580 К продолжает расти и появляется новый высокоинтенсивный пик при 830 К. Зависимость светосуммы в нем от дозы $S_{830}(D)$ представлена на вставке рис. 2 и демонстрирует значительное возрастание.

Для получения более высоких доз использовались электронные пучки аппарата „Арина-02“ и ускорителя УЭЛР-10-15С, обеспечивающие $D = 10^4 \div 3 \cdot 10^7$ Gy. На рис. 3, *a* представлены кривые ТЛ в зависимо-

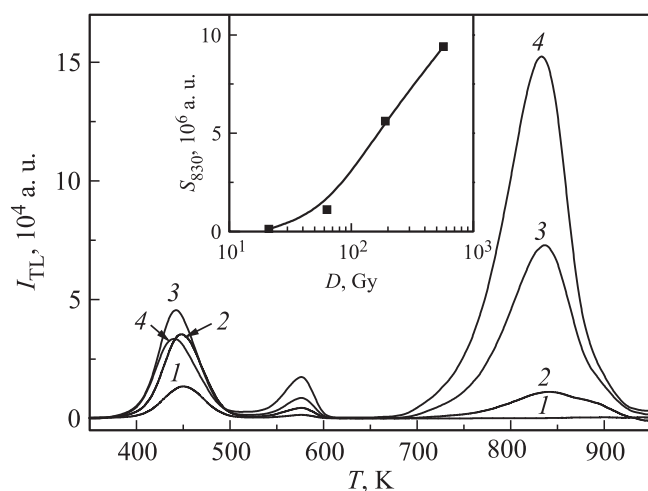


Рис. 2. Кривые ТЛ образца α – $\text{Al}_2\text{O}_{3-\delta}$, облученного импульсным рентгеновским излучением с $P_p = 2.6 \cdot 10^7$ Gy/s и D , Gy: 1 — 20; 2 — 60, 3 — 190, 4 — 570. На вставке: дозовая зависимость $S_{830}(D)$.

сти от дозы облучения. Как видно, наиболее существенные изменения интенсивности при указанных дозах наблюдаются для пика ТЛ при 830 К (кривые 1–4). Для него на рис. 3, *b* построена дозовая зависимость $S_{830}(D)$, которая имеет в двойных логарифмических координатах близкий к линейному вид в диапазоне 10^4 – $6 \cdot 10^6$ Gy. С целью сравнения откликов ТЛ на рис. 3, *a* (кривые 1 и 5) приведены кривые ТЛ образца, облученного электронами с одинаковыми дозами ($D = 1.5 \cdot 10^4$ Gy), но с различающимися энергиями: 180 keV и 10 MeV. Обращает внимание близость откликов в пике ТЛ при 830 К.

Таким образом, впервые в температурном интервале 300–1000 К изучены особенности ТЛ-свойств монокристаллов α - $\text{Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ и детекторов ТЛД-500 на их основе, облученных импульсными рентгеновскими и электронными излучениями в диапазоне доз $6 \cdot 10^{-2}$ – $3 \cdot 10^7$ Gy и мощностей доз 10^6 – 10^{11} Gy/s. Главная из них заключается в перераспределении, при высокодозном облучении, светосумм по высокотемпературным пикам ТЛ, причем наибольшим откликом к облучению в описанных условиях обладает пик ТЛ при 830 К. Для него исследована

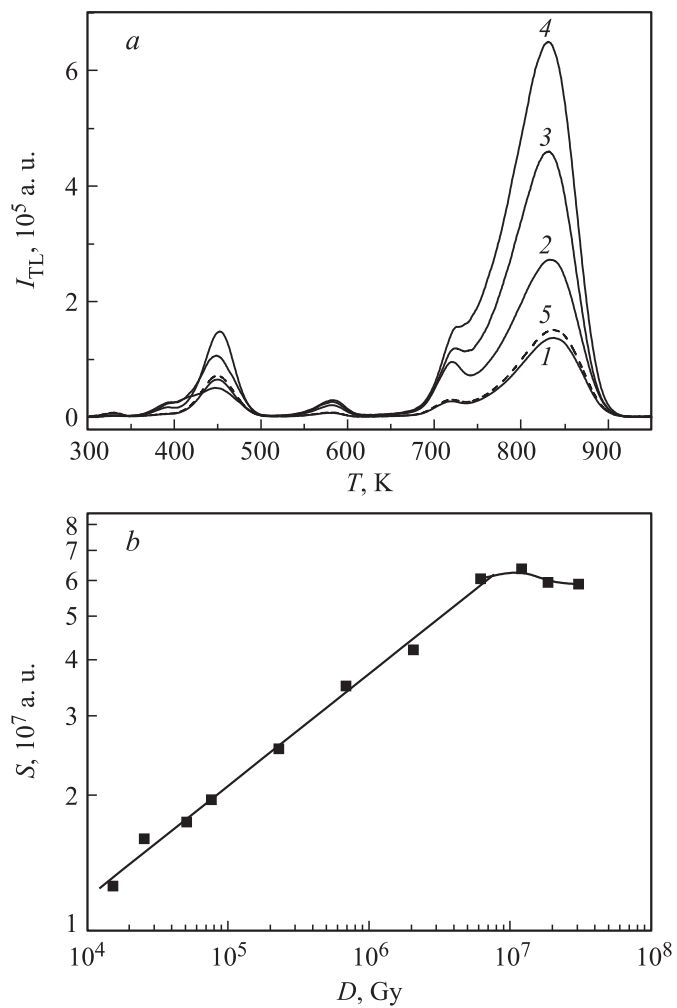


Рис. 3. *a* — кривые ТЛ образца α - $Al_2O_{3-\delta}$, облученного импульсным электронным пучком с энергией 180 keV (1–4) и 10 MeV (5) и дозами D , Gy: 1, 5 — $1.5 \cdot 10^4$, 2 — $2.3 \cdot 10^5$, 3 — $2.1 \cdot 10^6$, 4 — $6.2 \cdot 10^6$; *b* — дозовая зависимость $S_{830}(D)$.

дозовая зависимость, которая имеет линейный вид в диапазоне доз 10^4 – $6 \cdot 10^6$ Gy. В области доз 0.05–150 Gy проведено сравнение откликов ТЛ у α - Al_2O_3 – δ для непрерывного и импульсного рентгеновского облучения при мощности дозы $6 \cdot 10^6$ Gy/s. В отличие от непрерывного при импульсном облучении зарегистрирован линейный рост выходов ТЛ в основном и „хромовом“ пиках при 450 и 580 К соответственно, с уменьшением наклона дозовой зависимости для пика 450 К при дозах более 2 Gy.

Важным следствием полученных результатов является то, что область применения детекторов ТЛД-500 на основе α - Al_2O_3 – δ может быть существенно расширена, поскольку изученный в работе диапазон доз соответствует таким областям радиационных технологий, как стерилизация медицинских изделий, обработка продуктов питания, модификация полимерных изделий и т.д. Более того, поскольку импульсное электронное облучение низких энергий создает в поверхностном слое облучаемого объекта дозу, соизмеримую с дозой, полученной с помощью ускорителей высокоэнергетических электронов, указанное может быть применено для экспрессной стерилизации поверхностей изделий на месте, не прибегая к централизованной процедуре с использованием ускорителей.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (проект № 14-02-31522) и президиума УрО РАН (проект № 12-У-2-1032).

Список литературы

- [1] Алимов А.С. Практическое применение электронных ускорителей. М.: НИИЯФ МГУ, 2011. 41 с.
- [2] Itoh M., Stoneham A.M. Materials Modification by Electronic Excitation. Cambridge: University Press, 2001. 520 p.
- [3] Вавилов С.П., Горбунов В.И. Импульсное рентгеновское излучение в дефектоскопии. М.: Энергоатомиздат, 1985. 78 с.
- [4] Chen R., Pagonis V. Thermally and Optically Stimulated Luminescence: A Simulation Approach. Chichester: John Wiley & Sons, 2011. 419 p.
- [5] Gorbics S.G., Attix F.H. // Health Physics. 1973. V. 25. P. 499–506.
- [6] Obryk B., Bilski P., Olko P. // Radiat. Prot. Dosim. 2011. V. 144. N 1–4. P. 543–547.
- [7] Lo D., Lawless J.I., Chen R. // Radiat. Prot. Dosim. 2006. V. 119. P. 71–74.

- [8] *Milman I.I., Moiseykin E.V., Nikiforov S.V., Mikhailov S.G., Solomonov V.I.* // Radiat. Meas. 2004. V. 38. P. 443–446.
- [9] *Kortov V.S., Zvonarev S.V., Pustovarov V.A., Slesarev A.I.* // Radiat. Meas. 2014. V. 61. P. 74–77.
- [10] *Никифоров С.В., Кортон В.С., Звонарев С.В., Моисейкин Е.В.* // ЖТФ. 2014. Т. 84. В. 2. С. 92–97.
- [11] *Мильман И.И., Моисейкин Е.В., Никифоров С.В., Соловьев С.В., Ревков И.Г., Литовченко Е.Н.* // ФТТ. 2008. Т. 50. С. 1991–1996.
- [12] *Бессонова Т.С., Станиславский М.П., Собко А.И., Хаимов-Мальков В.Я.* // ЖПС. 1977. Т. 27. № 2. С. 238–243.
- [13] Детектор ТЛД-500К ТУ 2655-006-02069208-95.