

碱土金属硫化物光激励材料在辐射剂量测量中的应用

陈朝阳¹, 范艳伟¹, 刘艳平^{1,2}, 王军华¹, 巴维真¹, 郭旗¹, 常爱民¹, 陆 妩¹

1. 中国科学院新疆理化技术研究所, 新疆 乌鲁木齐 830011
2. 中国科学院研究生院, 北京 100039

摘 要 采用碳还原法合成了掺杂两种稀土金属离子的碱土金属硫化物光激励发光材料, 并对光激励发光材料的辐射剂量特性进行了研究。将材料做成 PMMA 剂量片在⁶⁰Co γ 源下接受辐照, 然后用自己搭建的在线实时测试系统对剂量片发出的荧光信号进行测量。实验发现碱土金属硫化物光激励发光材料在 0.01~1 000 Gy 内, 有很好的辐射剂量响应范围(5 个剂量级), 荧光信号峰值强度与辐照剂量线性关系良好, 说明碱土金属硫化物光激励发光材料在辐射剂量测量中有着很好的应用前景。文章主要探讨了碱土金属硫化物光激励发光材料在辐射剂量测量中的应用。

关键词 光激励发光; 在线测量; 电离辐射; 剂量标定

中图分类号: TL72, TL75+1 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2009)04-0896-05

引 言

光激励发光剂量计^[1-6]是近些年来出现的一种剂量探测仪器, 目前主要用于考古、地质勘探以及个人剂量监测等。它通过自带的激励光源照射光激励发光片, 即可完成清零(等同于热释光剂量计、PMOS 辐射剂量计的退火清零过程)。由于光激励发光材料本身的发光动态范围宽、灵敏度高^[7-12], 因此可根据不同的测量场所及剂量范围的需要, 利用不同的激励光源、光信号接收系统及放大倍数组组合, 设置探测的动态范围。光激励发光剂量计既可以测量某一较短时间内的近似瞬时剂量值, 也可以测量某一段相对较长时间的累积剂量。光激励发光剂量计, 具有体积小、能耗低等特点, 可应用于空间辐射的在线测量^[13-22]。目前国外已研制出使用于国际空间站的原理样机, 而国内在这一领域内的研究还处于空白, 因此我们对这种剂量计所用到的碱土金属硫化物光激励发光材料的辐射剂量特性进行了研究。

1 碱土金属硫化物光激励发光材料的光激励发光机理

本文选用的碱土金属硫化物光激励发光(optically stimulated luminescence, OSL)材料是采用碳还原法合成。光激励发光材料被 X 射线、 γ 射线、高能电子等辐照后, 价带上的电子被激发到导带, 被禁带中陷阱能级俘获, 当材料受到一

定波长的红外光照射激发后, 陷阱中电子跃迁到导带, 最后与禁带中的发光中心复合, 发出一定波长范围的荧光光子, 发光量的大小与辐照剂量在一定的数量级范围内有良好的线性关系。因此, 可以利用这种特性进行辐射剂量测量(原理图示于图 1)。

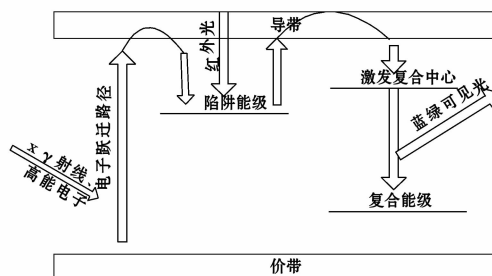


Fig. 1 Principle of OSL

2 光激励发光剂量计中的碱土金属硫化物光激励发光材料

2.1 材料的光谱特性

用 WGY-10 型荧光分光光度计(天津港东科技发展有限公司制造)探测样品的红外激励发射光强度与波长的关系, 采用卤灯为光源, 用 WGY-10 型荧光分光光度计监测样品红外激励发射光的能量随激励光波长变化的关系, 由图 2~图 4 可知, 样品的光激励发光光谱的波长范围为 450~750

收稿日期: 2007-10-22, 修订日期: 2008-01-28

基金项目: 国家自然科学基金项目(10875168)和中国科学院西部之光项目(2005 年)资助

作者简介: 陈朝阳, 1969 年生, 中国科学院新疆理化技术研究所研究员 e-mail: czy@ms.xjb.ac.cn

nm 的连续谱, 样品的光激励响应范围为 800~1 600 nm。

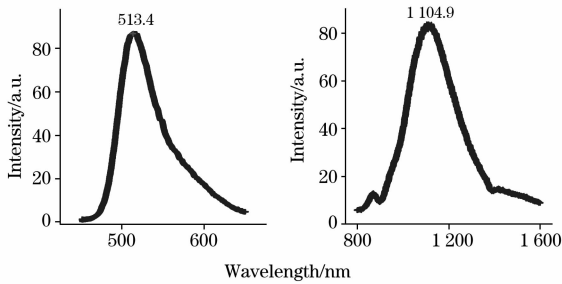


Fig. 2 Photo stimulation luminescence spectrum and photo-stimulation excitation spectrum of CaS : Ce, Sm

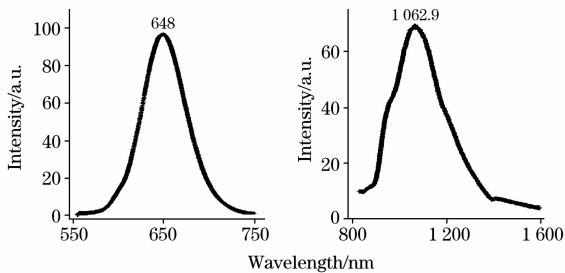


Fig. 3 Photo-stimulation luminescence spectrum and photo-stimulation excitation spectrum of CaS : Eu, Sm

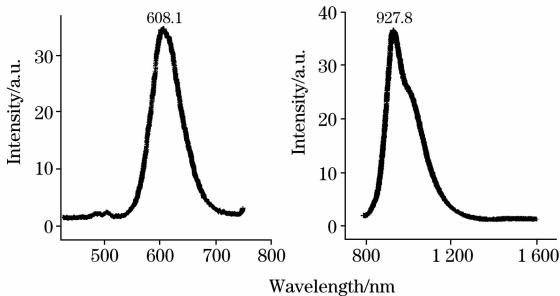


Fig. 4 Photo-stimulation luminescence spectrum and photo-stimulation excitation spectrum of SrS : Eu, Sm

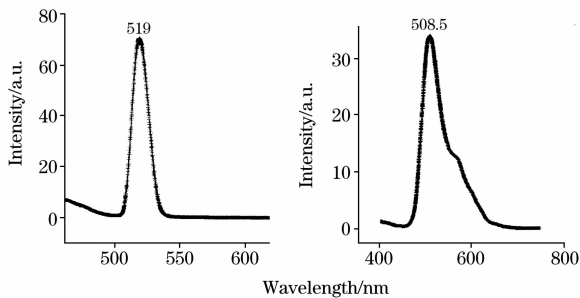


Fig. 5 Excitation spectrum and fluorescence spectrum of CaS : Ce, Sm

碱土金属硫化物光激励发光材料激发光谱和荧光光谱如图 5~图 7, 材料的激发光谱和荧光光谱表明紫外光和可见光的短波长部分均可有效激发该材料, 说明这类材料能实现常光充能。荧光光谱的范围为 400~750 nm 的宽带谱。

2.2 碱土金属硫化物光激励发光材料辐射剂量相关性测试方法

OSL 剂量计测量装置构成为, OSL 剂量计是由电源、可控的光源驱动电路、光源、探测支架、剂量片、滤光片、灵敏的光探测传感器、小信号放大电路、信号记录存储输出系统组成, 剂量计结构示于图 8。

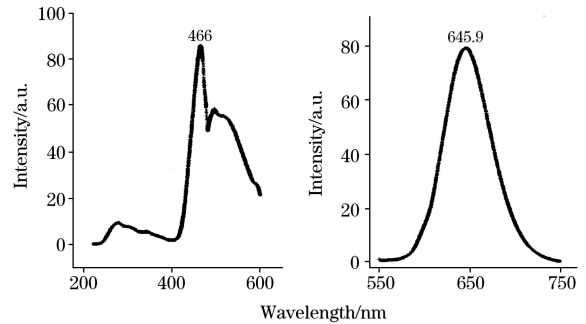


Fig. 6 Excitation spectrum and fluorescence spectrum of CaS : Eu, Sm

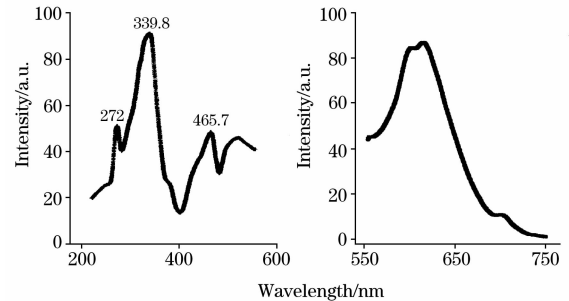


Fig. 7 Excitation spectrum and fluorescence spectrum of SrS : Eu, Sm

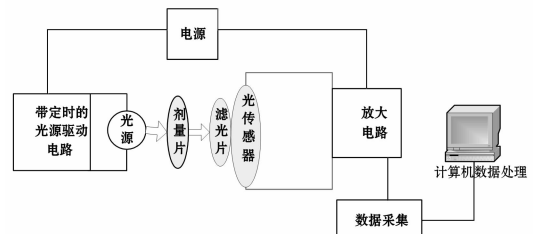


Fig. 8 Structural representation of dosimeter

3 实验

3.1 碱土金属硫化物光激励发光片的制作

光激励发光片(以下简称荧光片)的制作是剂量计研制中关键的一步, 它对辐射剂量的标定及探测结果有很大的影响。经过反复试验, 我们得到了所需的荧光片。其制备过程如下: 以透明的有机材料为基质材料, 将碱土金属硫化物光激励发光材料均匀分散到基质材料中, 制成厚为 300 μm 面积为 4 mm×4 mm 的荧光片, 荧光片样品见图 9。该荧光片厚度均匀、透光性好、成型性好且一致性好, 同时基质材料很好的保护了碱土金属硫化物光激励发光材料。

3.2 实验过程

本工作实验在⁶⁰Coγ源下进行, 使用的元件为自制的碱土金属硫化物光激励发光材料PMMA剂量片, 尺寸规格为



Fig. 9 Sample of OSL film

4 mm×4 mm, 厚度为 0.3 mm。实验时将该剂量片放在 4 mm 厚的 PMMA 制电子平衡器的空腔内, 以提供近似的电子平衡条件, 同时用不透光薄膜密封。将剂量片按每组 3 个样品分成 10 组, 然后用不透光薄膜密封, 在 $^{60}\text{Co}\gamma$ 源下接受 1, 10, 50, 100, 200, 500, 1 000, 5 000, 10 000, 100 000 rad 的辐照剂量, 室温放置 24 h, 然后用上述测量系统进行测量。

3.3 测量过程

先将剂量片接受一定剂量辐照, 然后触发光源驱动电路, 激励光源开始发光, 激励光照射荧光片, 荧光片发出荧光, 红外截止滤光片滤掉透射的红外光, 光电二极管将荧光转换成电流, 然后对电流进行电流电压转换, 通过记录电压值可得到辐射剂量相对值, 光激励发光信号的采集界面如图 10。

4 实验结果及分析

通过自行设计测量系统得到了用红外光激励后材料的发光强度随时间的变化曲线, 如图 11 所示。激励后发光强度在很短的时间内快速衰减, 在激励后 4 s 时降为峰值的约十分之一。分别记录不同剂量下荧光信号值, 碱土金属硫化物光激励发光材料接受不同剂量发光曲线如图 12~图 14, 根据

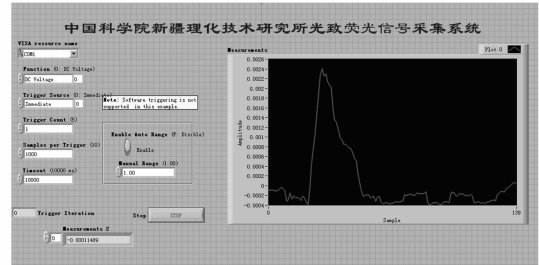


Fig. 10 OSL signal sample surface

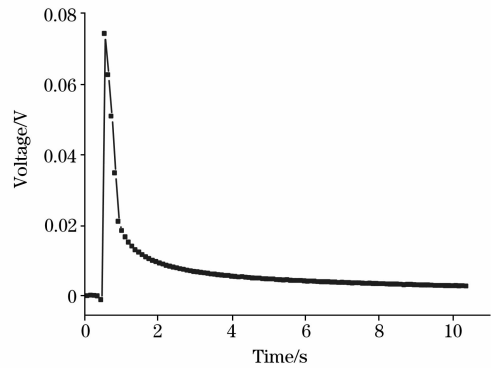


Fig. 11 Curve of OSL signal as a function of time

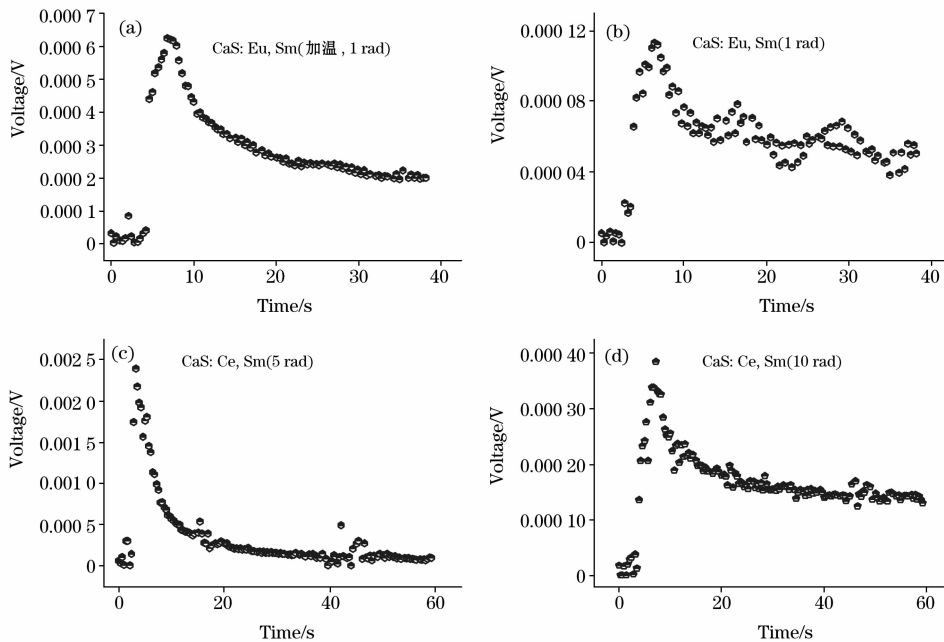


Fig. 12 Glow curves for CaS : Ce, Sm irradiated by different dose $^{60}\text{Co}\gamma$ rays

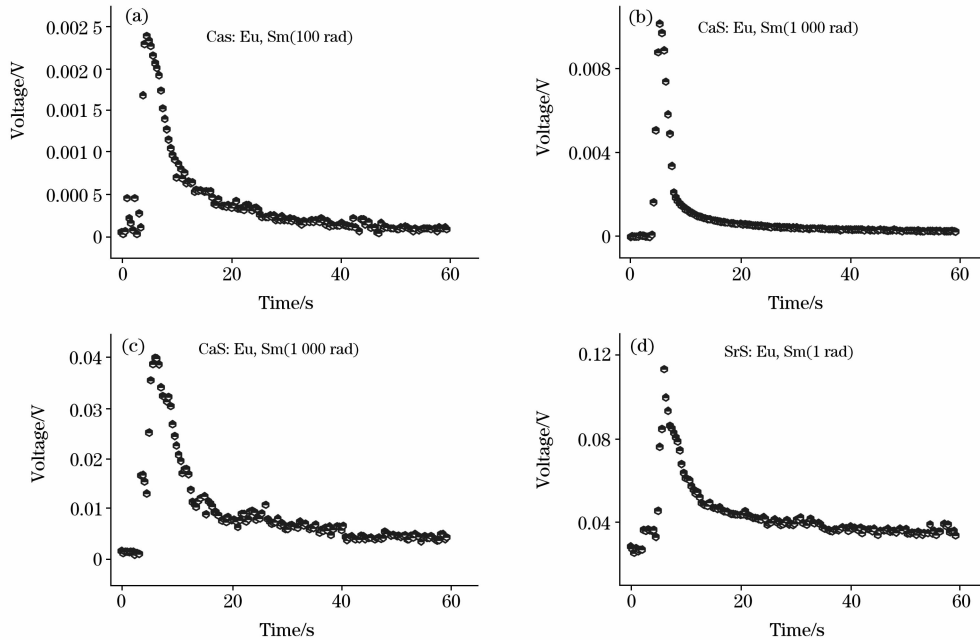


Fig. 13 Glow curves for CaS : Eu, Sm irradiated by different dose ⁶⁰Coγ rays

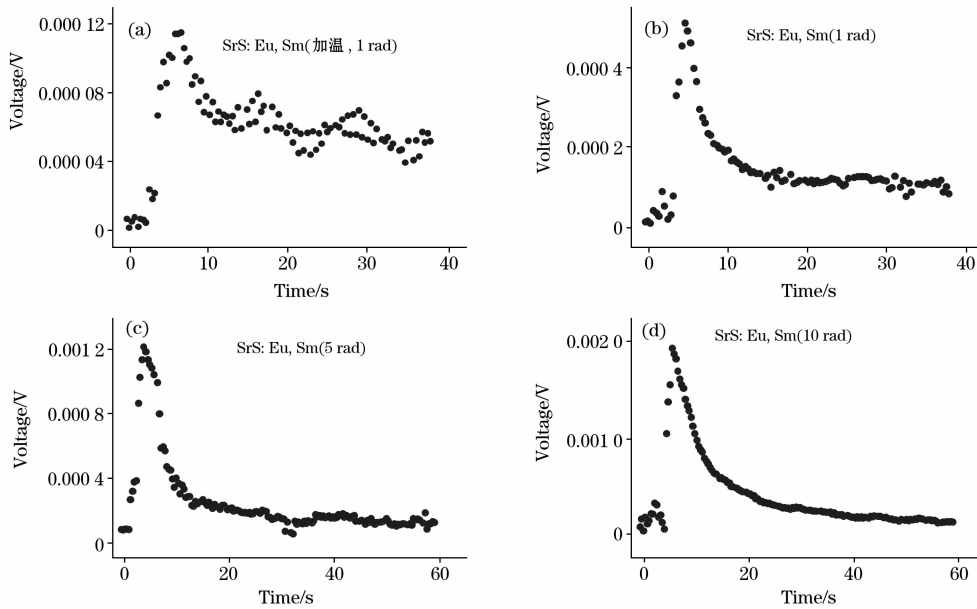


Fig. 14 Glow curves for SrS : Eu, Sm irradiated by different dose ⁶⁰Coγ rays

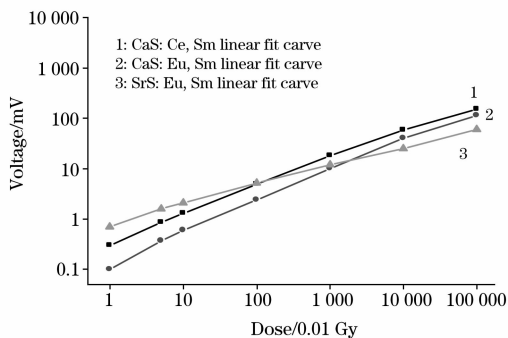


Fig. 15 Calibration curve of the OSL online dosimeter

不同剂量的发光曲线做出了荧光信号值-辐照量的对应曲线图 15。从图 14 可见碱土金属硫化物光激发发光材料在 0.01 ~1 000 Gy 内,有很好的辐射剂量响应(5 个剂量级),荧光信号峰值强度与辐照剂量线性关系良好,说明碱土金属硫化物光激发发光材料在辐射剂量测量中有着很好的应用前景。

5 结 论

通过碱土金属硫化物光激发发光材料开发了一种新型原理的测量辐射剂量的光激发发光剂量计,通过触发激光器即可在线进行辐射剂量测量及清零,方便快捷,由于光激发发

光剂量计剂量响应特性很好、体积小、耗能低、可在线清零等优点,可应用于空间在线测量,具有广泛的空间应用潜力。利用不同的光激励发光材料,结合其他技术制成的各种

类型的光激励发光剂量计,可应用于集成电路辐射效应、大型加速器高能粒子辐射剂量检测,个人剂量监测等领域。因此,光激励发光剂量计还具有广阔的民用推广前景。

参 考 文 献

- [1] Dusseau L, Plattard D, Vaile J R, et al. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2000, 47: 2412.
- [2] Holmes-Siedle A, Adams L. *Handbook of Radiation Effects*. USA: Oxford University Press, 2002, 342.
- [3] Fowler J F, Attix F H. *Radiation Dosimetry*, 1966, 2: 241.
- [4] Lenard P, Schmidt F, Tomaschek R. *Phosphoreszenz und Fluoreszenz*. Akademische Verlagsgesellschaft Press, 1928. 143.
- [5] Iida H. *Nippon Genshiryoku Gakkaishi*, 1963, 5: 412.
- [6] LIU Qiu-jiang, CHEN Chao-yang, FAN Yan-wei, et al(刘秋江, 陈朝阳, 范艳伟, 等). *Nuclear Electronics & Detection Technology(核电子学与探测技术)*, 2007, 27(2): 350.
- [7] Buhler P, Desorgher L, Zehnder A, et al. *Radiation Measurements*, 1996, 26: 917.
- [8] Bogorad A, Bowman C, Dennis A, et al. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 1995, 42: 2051.
- [9] MacKay G F, Thomson I, Ng A, et al. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 1997, 44: 2048.
- [10] Dusseau L, Polge G, Albert L, et al. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 1998, 45: 2695.
- [11] Gaza R, McKeever S W S, Akselrad M S, et al. *Radiation Measurements*, 2004, 38: 809.
- [12] LIU Qiu-jiang, CHEN Chao-yang, FAN Yan-wei, et al(刘秋江, 陈朝阳, 范艳伟, 等). *Atomic Energy Science and Technology(原子能科学技术)*, 2007, 41(4): 390.
- [13] Gaza R. *A Fiber-optics, Real-time Dosimeter Based on Optically Stimulated Luminescence of $Al_2O_3 : C$ and $KBr : Eu$ for Potential Use in the Radiotherapy of Cancer*. Cancer. United States, Oklahoma State University Press, 2004. 86.
- [14] XU Chang-tan, ZHOU Zhi-ming(许长谭, 周志明). *Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析)*, 2001, 21(3): 298.
- [15] Zheng W C, Zhou Q, Wu X X, et al. *Spectrochim. Acta A*, 2005, 61: 1243.
- [16] Pavotti F, Glaser M, Idri K et al. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2005, 52: 1568.
- [17] Gasiot J, Braunlich P, Fillard J P. *Applied Physics Letters*, 1982, 40(5): 376.
- [18] Gander M J, Galliot E A C, McBride R, et al. *Bend Measurement Using Mutli-Core Optical Fiber*. 12th International Conference on Optical Fiber Sensor, 1997. 166.
- [19] Santoro K, Charpiot L, Herault E, et al. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2004, 51(6): 3638.
- [20] RVaille J, Ducret S, Saigne K, et al. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2003, 50(6): 2358.
- [21] MIAO Zhuang, LI Shan-feng, ZHANG Qing-yu(苗 壮, 李善锋, 张庆瑜). *Acta Physica Sinica(物理学报)*, 2006, 55(8): 4321.
- [22] Gasiot J, Bräunlich P, Fillard P J. *Appl. Phys. Lett.*, 1982, 40: 376.

The Application of Alkaline-Earth Metal Sulphide Material in Radiation Dose Measurement

CHEN Chao-yang¹, FAN Yan-wei¹, LIU Yan-ping^{1, 2}, WANG Jun-hua¹, BA Wei-zhen¹, GUO Qi¹, CHANG Ai-min¹, LU Wu¹

1. Xinjiang Technical Institute of Physics & Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Urumqi 830011, China

2. Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China

Abstract In the present paper, the material of alkaline-earth metal sulphide doped with two kinds of rare-earth metal ions was prepared by carbon reduction method, and the radiation characteristics of optically stimulated luminescence of this material are described. The PMMA dosimeter films were taken into the radiation source, then the fluorescence signal from the dosimeter films was measured with the test system build by ourselves. The relation between the radiation dose and the fluorescence intensity of the dosimeter films was obtained. The measuring range of the dosimeter was from 0.01 to 1 000 Gy (5 orders of magnitude), and there is a good linear relationship between stimulated luminescence signal value of the material and the dose. It demonstrates that this device has a good prospect. This equipment is relatively simple, small in size and low in power consumption. This device is suitable for measuring the space radiation dose exploration.

Keywords Optically stimulated luminescence; Online measurement; Radiation; Dose calibration

* Corresponding author

(Received Oct. 22, 2007; accepted Jan. 28, 2008)