

ОПТИКА И ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА

УДК 538.97; 538.958

О ДВУХФОТОННОЙ ОПТИЧЕСКОЙ СТИМУЛЯЦИИ
ПРИ СЧИТЫВАНИИ РАДИАЦИОННЫХ ДЕТЕКТОРОВА. С. Селюков^{1,2,3}, А. Э. Применко², И. А. Захарчук^{1,2}, М. Н. Агапов¹,
М. Э. Гехт^{2,4}, М. И. Данилкин¹

На основе анализа литературных данных высказана мысль о том, что каскадный двухфотонный перенос дырок из ловушек к центрам рекомбинации имеет место в боратных люминофорах, применяемых в дозиметрии. Описанная ранее кинетическая модель дополнена поглощением второго фотона дыркой в метастабильном состоянии. Сделан вывод о необходимости точной стабилизации интенсивности потока стимулирующего света, если считывание происходит в двухфотонном режиме, поскольку в этом случае величина максимума на кривой высвечивания имеет сложную зависимость от интенсивности светового потока.

Ключевые слова: термолюминесценция, термически стимулированная люминесценция, оптически стимулированная люминесценция, термолюминесцентные детекторы радиации (ТЛД), персональная дозиметрия, кинетика ТСЛ и ОСЛ, тетрабораты лития и магния.

Термолюминесцентная дозиметрия применяется как для мониторинга доз облучения персонала, работающего с радиоактивными источниками различного рода, так и для решения технических или медицинских задач. Главное преимущество метода – компактные термолюминесцентные детекторы радиации (ТЛД), размещаемые в различных местах и объектах, и даже внутри человеческого тела или внутри фантомов.

¹ ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: selyukov@lebedev.ru.

² МГТУ им. Н. Э. Баумана, 105005 Россия, Москва, ул. 2-я Бауманская, 5, стр. 1.

³ Московский политехнический университет, 107023 Россия, Москва, ул. Большая Семеновская, 38.

⁴ Всероссийский институт научной и технической информации РАН, 125190 Россия, Москва, ул. Усевича, 20.

Сами ТЛД энергонезависимы и достаточно долго, месяцы или даже годы, хранят информацию о радиационной дозе. Однако считыватели ТЛД не столь компактны и обычно питаются от электросети. Поэтому очень привлекательно считывание на основе оптически стимулированной люминесценции (ОСЛ) взамен термически стимулированной (ТСЛ), особенно при нынешней доступности компактных светодиодных источников света и возможности их использования с портативными/автономными источниками питания. Глобально реализован лишь один коммерческий проект фирмы Landauer®, где применяются ОСЛ-дозиметры на основе оксида алюминия. Но они имеют недостаток – так называемый “ход с жесткостью”, или зависимость отклика детекторов от энергии падающих на них излучений. Это не мешает измерять дозу радиации от одного источника с известным спектром, но не позволяет проводить измерения в смешанных радиационных полях. Для смешанных радиационных полей, и в частности, для “мягких” и слабопроникающих излучений, хорошо подходят детекторы на основе материалов с небольшим эффективным зарядом ядра, или тканеэквивалентные детекторы. В них первичные процессы поглощения и преобразования энергии излучения сходны с происходящими в человеческих мягких тканях. Такие детекторы изготавливаются на основе всего лишь нескольких материалов, таких как фтористый литий, оксид бериллия, тетраборат лития, тетраборат магния и алмаз. Ход с жесткостью у них [1, 2] очень близок к таковому у воздушных ионизационных камер, служащих основой метрологии ионизирующих излучений. Поэтому идея ОСЛ-дозиметрии на тканеэквивалентных детекторах очень актуальна в наше время, особенно для точного планирования процедур облучения пациентов в современной радиационной медицине, ведь задача измерения распределения дозы в сложном смешанном радиационном поле пика Брэгга должна решаться тканеэквивалентными детекторами. ОСЛ-считывание позволяет не только значительно ускорить процесс измерений, но и считывать запоминающие экраны на основе тех же материалов.

Проведенные различными авторами исследования по этой теме сузили круг подходящих материалов. Так, детекторы на основе фтористого лития плохо переносят дозу от тяжелых частиц (протонов и ионов), имея низкий порог радиационной деградации при высокой плотности ионизации в треках [3]. Керамика на основе оксида бериллия при обработке дает опасные отходы. Алмазные детекторы имеют большой разброс чувствительности, поэтому подборка однородных партий значительно их удорожает. В итоге интересы сомкнулись вокруг детекторов на основе боратов.

ОСЛ материалов на основе тетрабората магния уже изучается [4–7], и существуют опытные образцы запоминающих экранов [8]. Однако среди всех возможных редкоземельных активаторов в тетраборате магния для ОСЛ-дозиметрии пригодны лишь те, которые исходно входят в тетраборат магния в трехзарядном состоянии [9, 10]. И если вхождение церия в нужном состоянии и его эффективная ОСЛ уже подтверждены [4–7], то использование тербия как активатора в тетраборате магния описано лишь в небольшом числе работ [11–14]. Тербий обладает зеленым свечением (в противовес ультрафиолетовому излучению церия), что позволяет считывать запоминающие экраны намного быстрее, не лазером по точкам, а путем фотографирования экрана через фильтр с соответствующей стимулирующей вспышкой.

Однако особенности получаемого сигнала ОСЛ вызывают вопросы. С одной стороны, тербий действительно входит в тетраборат магния в состоянии $3+$, что следует из характерной фотолюминесценции [12–14], и действительно дает эффективную ТСЛ [12–14] и ОСЛ [14]. А с другой стороны, наша попытка получить сигнал ОСЛ от опытного образца люминофора при не слишком большой интенсивности стимулирующего света (через монохроматор от ксеноновой лампы мощностью 150 Вт) не увенчалась успехом. Вспоминая о значительном энергетическом барьере для переноса дырок в тетраборате лития [15, 16], а также зная о дырочном характере процессов в тетраборате магния [12], можно ожидать, что подобный барьер существует также и в последнем в силу значительного сходства энергетической структуры этих материалов [17, 18]. При значительной величине барьера ОСЛ-считывание при комнатной температуре может быть невозможным [16]. Тем не менее, в тетраборате лития с марганцем наблюдалась как ОСЛ, так и оптическое опустошение ловушек, регистрировавшееся как уменьшение интенсивности кривой ТСЛ [19], но лишь при достаточно высокой интенсивности света (по оценкам, не менее 10^{16} фотонов в секунду на см^2). ОСЛ $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Tb}^{3+}$ [14] измеряли на приборе с голубым модулем для ОСЛ (460–470 нм) с четырьмя мощными светодиодами по 30 мВт световой мощности каждый, и с дополнительной фокусировкой на образце, то есть ОСЛ наблюдали опять же при высокой плотности светового потока. Кроме того, спектр стимуляции ОСЛ, приведенный для $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Ce},\text{Li}$ [5], имеет максимум в области длин волн короче 400 нм (за пределами области измерений в [5]), а типичные кривые затухания ОСЛ снимались во всех работах при воздействии голубого света 460–470 нм, где эффективность стимуляции, судя по спектру, довольно низкая.

Всё это наводит на мысль, что ОСЛ в боратных люминофорах – это двухфотонный процесс, когда первый фотон переводит захваченную дырку в некое промежуточное возбужденное состояние, в котором может поглощаться второй фотон, забрасывающий дырку глубже в валентную зону, и уже оттуда она может локализоваться вблизи центра рекомбинации. Возможность этого подтверждается обнаружением в нелегированном тетраборате лития радиационно-индуцированных полос короткоживущего оптического поглощения (КОП) [20, 21]. Для КОП характерно ослабление поглощения во времени по гиперболическому закону (в миллисекундном диапазоне), которое связывалось авторами с туннельной рекомбинацией дырок с электронами, а само КОП – с поглощением света метастабильными дырочными центрами [20, 21]. КОП состоит из нескольких широких перекрывающихся полос, и максимум центральной полосы лежит в области около 400 нм [20, 21]. Следовательно, если первый фотон сумеет перевести захваченную дырку в метастабильное состояние, то вероятность поглощения второго фотона увеличивается в силу лучшего перекрытия спектра стимулирующего света со спектром КОП.

Следовательно, весьма полезно дополнить ранее опубликованную математическую модель ОСЛ [16] поглощением второго фотона дыркой в промежуточном (метастабильном) состоянии, а затем провести анализ доступных данных [14], продемонстрировав плюсы и минусы двухфотонной ОСЛ.

ОСЛ и ТСЛ с транспортным барьером E_R и с дополнительным действием высвечивающего света описываются простой кинетической моделью. В нашем случае ловушки дырочные, а центры рекомбинации электронные. Пусть N_C – число дырок в ловушках, N_R – число дырок в промежуточном метастабильном состоянии. Пусть скорость теплового освобождения дырок $W_T = W_{0T} \cdot \exp(-E_T/kT)$ (E_T – энергия термической активации, W_{0T} – частотный фактор), скорость повторного захвата дырок W_C , скорость перехода дырок в промежуточное метастабильное состояние под действием света $W_O = \Phi \cdot \sigma_C$ (Φ – поток света в фотонах/с/см², σ_C – сечение взаимодействия фотонов с захваченными дырками), скорость рекомбинации дырок путем преодоления теплового барьера $W_{RT} = W_{0R} \cdot \exp(-E_R/kT)$, скорость рекомбинации дырок при оптическом переносе к центру рекомбинации $W_{RO} = \Phi \cdot \sigma_R$ (Φ – поток света в фотонах/с/см², σ_C – сечение взаимодействия фотонов с дырками в метастабильном состоянии). Тогда количество захваченных дырок описывается уравнением:

$$\frac{dN_C}{dt} = W_C \cdot N_R - W_T \cdot N_C - W_O \cdot N_C. \quad (1)$$

Количество дырок, оказавшихся в промежуточном (метастабильном) состоянии, описывается уравнением с дополнительным членом оптического переноса:

$$\frac{dN_R}{dt} = W_T \cdot N_C + W_O \cdot N_C - W_C \cdot N_R - W_{RT} \cdot N_R - W_{RO} \cdot N_R. \quad (2)$$

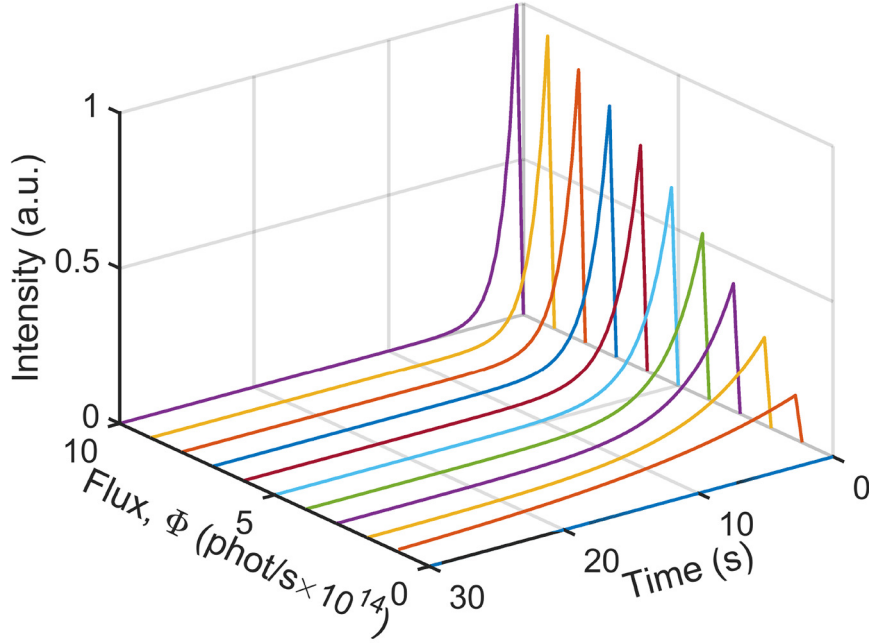


Рис. 1: Кривые затухания ОСЛ во времени при постоянном потоке Φ стимулирующего света в зависимости от величины этого потока.

Вместо W_R в прежней системе уравнений [16] появляется сумма скоростей рекомбинации W_{RT} и W_{RO} от двух механизмов переноса дырки: теплового и оптического. В остальной системе уравнений не отличается от прежней и имеет решение вида [16]:

$$I_{LUM}(t) = \frac{N_{C0}}{(\tau_2 - \tau_1)} \cdot (e^{-t/\tau_2} - e^{-t/\tau_1}). \quad (3)$$

Здесь N_{C0} – начальное число дырок в ловушках, а τ_1 и τ_2 вычисляются по формулам:

$$\tau_1 = \frac{(W_C + W_{RT} + W_{RO} + W_O + W_T) - \sqrt{(W_C + W_{RT} + W_{RO} + W_O + W_T)^2 - 4 \cdot (W_O + W_T) \cdot (W_{RT} + W_{RO})}}{2 \cdot (W_O + W_T) \cdot (W_{RT} + W_{RO})},$$

$$\tau_2 = \frac{(W_C + W_{RT} + W_{RO} + W_O + W_T) + \sqrt{(W_C + W_{RT} + W_{RO} + W_O + W_T)^2 - 4 \cdot (W_O + W_T) \cdot (W_{RT} + W_{RO})}}{2 \cdot (W_O + W_T) \cdot (W_{RT} + W_{RO})}. \quad (4)$$

Они и содержат дополнительную зависимость от светового потока Φ .

Семейство кривых затухания ОСЛ при нескольких постоянных значениях светового потока Φ стимулирующего света построено на рис. 1. В расчете использованы сечения взаимодействия стимулирующего света с дырками $\sigma_C = 1 \times 10^{-15} \text{ см}^2$ и $\sigma_R = 1 \times 10^{-11} \text{ см}^2$. Эти значения при симуляции обеспечивали форму кривой, соответствующую реальным данным по ОСЛ из работы [14]. Остальные параметры для моделирования (W_{0R} , W_{0T} , W_C , E_T , E_R) получены с использованием пика ТСЛ из работы [14]. Максимальная интенсивность ОСЛ растет с интенсивностью высвечивающего света, но испытывает насыщение и даже может начать убывать при больших потоках Φ из-за невозможности накопить заметное число метастабильных дырок. Это свойство двухфотонной ОСЛ заставляет при измерениях дозы действовать двумя способами: либо высвечивать всю запасенную энергию полностью, интегрируя сигнал ОСЛ (что увеличивает время считывания и стирает всю информацию), либо при импульсном считывании точно выдерживать максимальную плотность и интегральную величину светового потока в импульсе на поверхности измеряемого детектора. В противном случае ОСЛ-дозиметрия при двухфотонном процессе не может претендовать на точный результат измерений. Зато при достаточно большой величине барьера E_R двухфотонный способ считывания уже не требует стабилизации температуры, в отличие от обычного “однофотонного” способа в режиме насыщения. Таким образом, при создании дозиметрических систем на основе ОСЛ необходимо делать осознанный выбор между этими двумя режимами для получения разумного результата. При оптической стимуляции, действующей сразу на несколько типов ловушек, кривая высвечивания будет представлять собой сумму нескольких индивидуальных кривых, если между центрами нет рекомбинационного взаимодействия. При этом выводы, сделанные в работе, принципиально никак не изменятся. Если в сигнал ОСЛ дают вклад низкотемпературные пики, то точность ОСЛ-считывания значительно ухудшается из-за фединга (потери запасенной энергии с течением времени).

Таким образом, в данной работе с помощью численного моделирования показана возможность двухфотонной оптической стимуляции при считывании радиационных детекторов. Правдоподобность данной модели, с одной стороны, следует из наблюдавшихся полос КОП [20, 21], а с другой стороны, требует экспериментальной валидации, что будет предметом дальнейших исследований.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] T. P. Selvam, B. Keshavkumar, *Journal of Applied Clinical Medical Physics* **11**(4), 70 (2010). <https://doi.org/10.1120/jacmp.v11i4.3282>.

- [2] G. Portal, W. G. Cross, G. Dietze, et al., Reports of the International Commission on Radiation Units and Measurements **os-24(2)**, 7 (1992). https://doi.org/10.1093/jicru_os24.
- [3] P. Bilski, B. Marczevska, W. Gieszczyk, et al., Optical Materials **90**, 1 (2019). <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2019.02.014>.
- [4] E. G. Yukiwara, B. A. Doull, T. Gustafson, et al., Journal of Luminescence **183**, 525 (2017). <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2016.12.001>.
- [5] T. D. Gustafson, E. D. Milliken, L. G. Jacobsohn, E. G. Yukiwara, Journal of Luminescence **212**, 242 (2019). <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2019.04.028>.
- [6] L. F. Souza, A. M. B. Silva, P. L. Antonio, et al., Radiation Measurements **106**, 196 (2017). <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2017.02.009>.
- [7] L. F. Souza, A. L. F. Novais, P. L. Antonio, et al., Radiation Physics and Chemistry **164**, 108353 (2019). <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.108353>.
- [8] N. Shrestha, D. Vandembroucke, P. Leblans, E. G. Yukiwara, Physics Open **5**, 100037 (2020). <https://doi.org/10.1016/j.physo.2020.100037>.
- [9] И. А. Захарчук, А. С. Селюков, М. И. Данилкин и др., Вестник НИЯУ МИФИ **11(2)**, 164 (2023). <https://doi.org/10.56304/S2304487X22020134>.
- [10] И. А. Захарчук, А. С. Селюков, М. И. Данилкин и др., АНРИ (Аппаратура и новости радиационных измерений), № 3 (114), 45 (2023). <https://doi.org/10.37414/2075-1338-2023-114-3-45-55>.
- [11] E. G. Yukiwara, E. D. Milliken, B. A. Doull, Journal of Luminescence **154**, 251 (2014). <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2014.04.038>.
- [12] O. Annalakshmi, M. T. Jose, U. Madhusoodanan, et al., Radiation Effects and Defects in Solids **169(7)**, 636 (2014). <https://doi.org/10.1080/10420150.2014.918128>.
- [13] Y. S. Kawashima, C. F. Gugliotti, M. Yee, et al., Radiation Physics and Chemistry **95**, 91 (2014). <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2012.12.033>.
- [14] C. B. Palan, S. K. Omanwar. 2nd National Conference Recent Innovations in Science and Engineering (NC-RISE 17) **5(9)**, Shegaon, Maharashtra, India, 2017. [https://ijritcc.org/download/conferences/NC-RISE_17/Track_6_\(ASH\)/1506931003_02-10-2017.pdf](https://ijritcc.org/download/conferences/NC-RISE_17/Track_6_(ASH)/1506931003_02-10-2017.pdf).
- [15] A. Ratas, M. Danilkin, M. Kerikmäe, et al., Proceedings of the Estonian Academy of Sciences **61(4)**, 279 (2012). <https://doi.org/10.3176/proc.2012.4.03>.
- [16] А. С. Селюков, А. Э. Применко, Т. А. Гарденина, М. И. Данилкин, Краткие сообщения по физике ФИАН **47(11)**, 37 (2020). <https://doi.org/10.3103/S1068335620110093>.
- [17] C. Santos, A. F. Lima, M. V. Lalic, Computational Materials Science **95**, 271 (2014). <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2014.07.038>.
- [18] T. M. Oliveira, A. F. Lima, M. G. Brik, et al., Computational Materials Science **124**,

- 1 (2016). <https://doi.org/10.1016/j.commsci.2016.07.007>.
- [19] M. Danilkin, I. Jaek, M. Kerikmäe, et al., *Radiation Measurements* **45**(3-6), 562 (2010). <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2010.01.045>.
- [20] И. Н. Огородников, В. Ю. Яковлев, А. В. Кружалов, Л. И. Исаенко, *Физика твердого тела* **44**(6), 1039 (2002). <https://doi.org/10.1134/1.1485012>.
- [21] I. N. Ogorodnikov, N. E. Poryvay, V. A. Pustovarov, *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* **15**(1), 012016 (2010). <https://doi.org/10.1088/1757-899X/15/1/012016>.

Поступила в редакцию 23 апреля 2024 г.

После доработки 28 мая 2024 г.

Принята к публикации 29 мая 2024 г.