

α -Al₂O₃:C 单晶的 β 辐射热释光与光释光性能研究

范志鹏^{1,2} 杜景红¹ 邹宇琦² 王静雅² 姜大朋² 徐军²

¹ (昆明理工大学材料科学与工程学院 昆明 650093)

² (中国科学院上海硅酸盐研究所 上海 201800)

摘要 以高纯碳粉作为碳源直接加入原料,采用导模法(EFG)生长了 α -Al₂O₃:C 单晶。研究了晶体经过低剂量 β 射线辐照后的热释光与光释光特性, α -Al₂O₃:C 单晶的热释光发光曲线在 350 K、540 K 和 689 K 附近有 3 个热释光峰,540 K 附近为主要热释光峰,689 K 附近为新的热释光峰,发现晶体的陷阱能级深度发生变化并产生了新深度的陷阱能级;随着 β 吸收剂量的增加,发光强度也随之增强,但是 3 个热释光峰温位置大致保持不变。在多次连续同剂量辐照过程中,随着辐照次数的增加,主热释光峰强度增强,峰温向高温方向偏移。 α -Al₂O₃:C 单晶的光释光衰减曲线呈指数变化,其由前期快衰减部分和后期慢衰减部分组成,快衰减部分衰减速率随着吸收剂量的增加变化很小,而慢衰减部分衰减速率则有较为明显的减慢。在低剂量范围内(低于 10 Gy),热释光和光释光过程灵敏度不随吸收剂量而变化,剂量响应曲线呈线性的特点。

关键词 α -Al₂O₃:C, β 射线,热释光,光释光

中图分类号 TL81

DOI: 10.11889/j.1000-3436.2015.rj.33.020801

随着我国原子能应用的快速发展,放射性物质的广泛应用,吸收剂量的检测越来越重要,而材料的热释光特性已经广泛应用于环境和个人吸收剂量的检测。当前在吸收剂量领域上常用的热释光材料有 LiF 系列、CaSO₄ 系列、CaF₂ 系列以及 Li₂B₄O₇ 系列^[1],其中 LiF 系列是现今应用最广的热释光材料,其热释光性能优异,但是这种材料为粉末,没有制成片状,不利于后期的加工和使用前后的退火;CaSO₄ 系列的热释光灵敏度很高,但其主发光峰的峰温较低,导致其热释发光信号显著地衰减;CaF₂ 系列的热释光灵敏度也很高,是 LiF 的 40–50 倍,但是其对光、尤其是紫外光极为敏感,信号的光致衰减极其显著;Li₂B₄O₇ 系列的热释光峰稳定且温度适中(473.5 K),再次使用无需退火,但其储存热释光信号的能力较差,且有明显的衰减现象,主热释光峰波长和常用的滤波片不匹配,导致其表现出较低的灵敏度。所以,研究综合性能优异的热释光剂量学材料至关重要。

光释光材料也开始在辐射检测领域应用,与热释光相比,光释光材料有使用无需加热,读出设备

简单,读取信号速度快的优点,特别是在年代测量有广泛的应用。 α -Al₂O₃:C 单晶是优异的热释光与光释光材料,其单晶具有热释光灵敏度高、热释光峰稳定且峰温适中、背底影响与剂量阈值较低、热释光和光释光线性剂量响应范围较宽、热释光和光释光信号衰退速率缓慢、低剂量(10 Gy 以下)下可多次重复使用等一系列优点^[2]。因此, α -Al₂O₃:C 单晶未来很可能取代现在常用辐射检测材料,如 LiF:Mg、Ti^[3]和 LiF:Mg、Cu、P^[4],成为未来辐射检测的主要材料。本文主要研究 α -Al₂O₃:C 单晶探测器对低剂量 β 射线辐照后的热释光和光释光特性。

1 材料制备与测试设备

1.1 释光探测器材料及其制备

释光探测器材料为导模法(EFG)生长的 α -Al₂O₃:C 单晶,以高纯的 α -Al₂O₃ 粉和碳粉为原料,按碳含量 0.5%配料混合均匀后球磨 24 h,初压后冷等静压,放入导模炉生长。出炉后由内圆切割机切成尺寸为 5 mm×5 mm×1 mm、方向为 a[1120]的晶体薄片。

基金资助:国家自然科学基金项目(61177037)资助

第一作者:范志鹏,男,1988年8月出生,2010年于江西理工大学获工学学士学位,无机非金属材料工程专业,2012年就读昆明理工大学硕士研究生,材料学专业,目前于中国科学院上海硅酸盐研究所联合培养,E-mail: 601852338@qq.com

通讯作者:邹宇琦,博士,副研究员,E-mail: yqzou@mail.sic.ac.cn

收稿日期:初稿 2015-01-13;修回 2015-03-04

1.2 测量设备

测试是在 Risø-TL/OSL-20 测量仪上进行, 激发光源为蓝光 ($470\text{ nm} \pm 30\text{ nm}$), 探测设备为 EMI9235QA 光电倍增管, 光电倍增管前段装备了 7.5 mm 滤光片 U-340 ($290\text{--}370\text{ nm}$)。测量设备自带放射源, 实验所需的所有辐照都在该设备上进行。该仪器自带的 Beta 辐照器配有 $1.48\text{ GBq } ^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ β 源, 可以发射出最大能量为 2.27 MeV 的 β 射线。在晶体探测器位置的吸收剂量率约 0.1 Gy/s 。辐照源与晶体距离 5 mm , 在 Beta 辐照器与测量室之间有一个厚度 0.125 mm 的 Be 窗, 作为一个真空接口。

2 测试与分析

2.1 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的热释光性能

图 1 是 Risø-TL/OSL-20 测量仪测到 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器在 5 种低剂量 β 射线辐照下的热释光曲线 (退火去掉剂量片自身的释光信号后, 辐照不同剂量后的发光曲线), 升温速率为 5 K/s 。 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的 3 个热释光特征峰温分别位于 350 K 、 540 K 和 689 K 附近, 伴随着 β 吸收剂量的增加, 晶体中陷阱俘获的电子浓度随之增加, 导致其 3 个热释光峰的发光强度也随之增强, 但 3 个热释光峰的峰温位置都大致保持不变。与张纯祥等^[5]报道的纯 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 单晶探测器 β 射线辐照后检测热释光峰 (峰位位于 349 K 和 480 K) 相比, 350 K 附近的热释光峰与纯 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 单晶探测器 (349 K) 相当吻合, 而 540 K 附近的主要热释光峰相对纯 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 单晶探测器则往高温方向偏移了近 60 K , 还出现位于 689 K 附近的新热释光峰。与 Akselrod 等^[6]报道的 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器热释光峰 (330 K 和 480 K) 和杨新波等^[7]报道的 (322 K 和 462 K) 相比, 前两个热释光峰温偏高, 689 K 附近的热释光峰也是新峰。他们研究的晶体是在碳存在的还原气氛下生长的, 而我们研究的晶体是以高纯碳粉作为碳源直接加入原料生长的, 采用这种掺杂方式下生长出的晶体碳掺杂浓度较高, 晶体的陷阱能级也有所变化, 具体表现为热释光峰温向高温方向偏移 (330 K 和 $322\text{ K} \rightarrow 350\text{ K}$ 附近, 480 K 和 $462\text{ K} \rightarrow 540\text{ K}$ 附近), 且产生了新热释光峰 (689 K 附近), 根据陷阱深度 E 与峰温 T_m 的近似关系 $E = \text{常数} \times T_m$, 以高纯碳粉作为碳源直接加入原料生长的晶体陷阱能级深度发生变化并产生了新深度的陷阱能级。

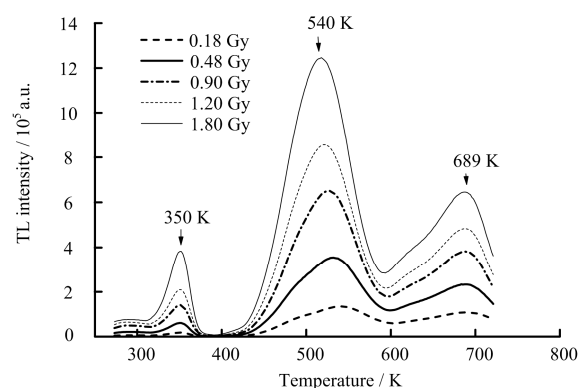


图 1 5 种吸收剂量下 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的热释光曲线
Fig.1 TL curves of the $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ crystal detector irradiated with five kinds of dose

图 2 是 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器 10 次连续同剂量辐照后测试的热释光曲线, 样品每辐照 1 Gy 剂量的 β 射线, 测试一次热释光数据。从图 2 中可以看出, 随着辐照次数的增加, 540 K 附近的主热释光峰强度随之增强, 峰温向高温方向偏移; 而 356 K 附近的热释光峰温变化不大, 但第 1 次辐照后的热释光强度远大于后面 9 次的。 540 K 附近的主热释光峰在 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器经过第 1 次辐照后做热释光测试, 释光并不完全, 陷阱俘获的电子没有完全激发出来, 累计到下一次辐照, 导致下一次测得吸收剂量大于上一次, 主热释光峰强度随之增强; 多次连续辐照还会使陷阱能级深度增加, 导致主热释光峰峰温向高温方向偏移; 356 K 附近的热释光峰由于样品测试前没有退火, 环境辐照的残留, 导致第一次释光强度远大于后面 9 次。

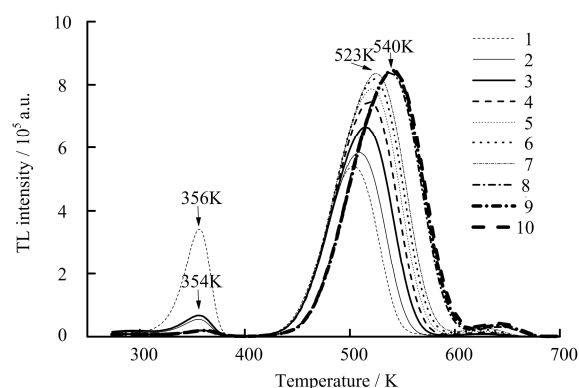


图 2 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器 10 次连续同剂量辐照后测试的热释光曲线
Fig.2 TL curves of the $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ crystal detector uninterrupted irradiated with ten times same of dose

2.2 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的光释光性能

图 3 是热释光/光释光测量仪 (Risø-TL/OSL-20) 测到 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器在 5 种 β 射线吸收剂量

下的光释光衰变曲线(常温下测试,未对样品进行预热)。辐照源为 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ β 源,激发光源为测量仪内附带的蓝光光源(波长 470 nm),从图 3 中可以看出 5 种吸收剂量的光释光衰变曲线都随时间呈指数变化衰减,前期衰减快,后期衰减速率变慢, β 吸收剂量越大,光释光强度越大。图 4 是图 3 中光释光强度归一化处理后的 β 光释光衰变曲线。

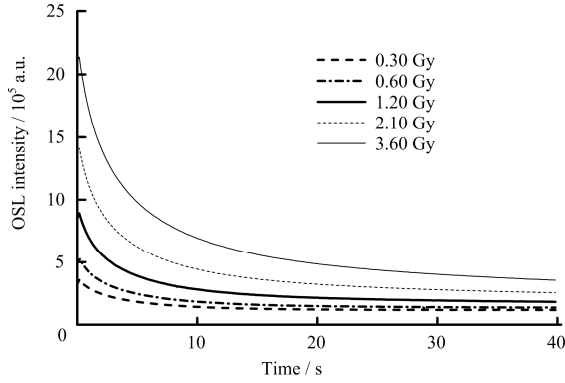


图 3 5 种吸收剂量下 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 晶体探测器的光释光衰变曲线

Fig.3 OSL decay curves of the $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ crystal detector irradiated with five kinds of dose

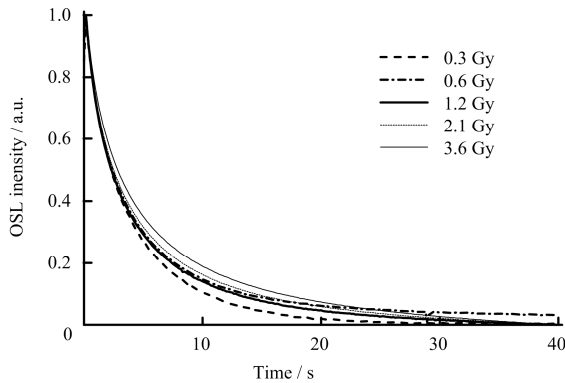


图 4 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的发光强度归一化光释光衰变曲线

Fig.4 OSL decay curves of luminous intensity normalization of the $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ crystal detector irradiated with a variety of dose

从图 4 可知, $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器具备优异的光释光性能,衰变曲线由前期的快衰减部分和后期的慢衰减部分组成。与杨新波等^[7]报道的高剂量光释光衰变曲线相比,快衰减部分的衰减速率都是随着吸收剂量的增加变化很小,而慢衰减部分则有相反的结果,衰减速率随着吸收剂量的增加有较为明显的减慢。 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的光释光衰变曲线中快衰减部分主要取决于晶体中的复合中心(F 色心)的荧光寿命,而 F 色心的荧光寿命主要受温度的影响,吸收剂量的增减对其影响较小^[8]; Markey 等^[9]发现,衰减曲线中慢衰减部分主要取决于两个位于导带附近的浅陷阱能级俘获的电子浓

度,随着吸收剂量的增加,这两个浅陷阱能级俘获的电子浓度也会随之增加,光完全激发陷阱内的电子的时间会增加,所以慢衰减部分的衰减速率减慢。

2.3 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的吸收剂量响应

图 5 是实验测得 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的热释光和光释光吸收剂量响应曲线,辐照源为 ^{90}Sr β 射线,剂量低于 10 Gy,由图 5 可知, $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器在低吸收剂量范围热释光和光释光响应曲线呈明显的线性响应,灵敏度不随吸收剂量而变化,可以很好的应用在 β 射线吸收剂量检测领域。

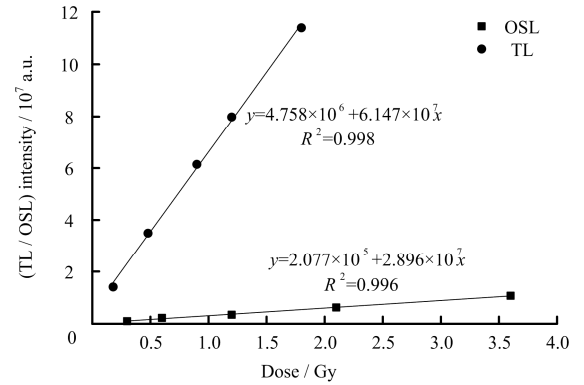


图 5 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的热释光与光释光剂量响应曲线{圆点是热释光峰(540 K)的面积积分 S_{TL} ,方块是光释光衰减曲线的积分面积 S_{OSL} ,实线是剂量响应的拟合曲线}

Fig.5 TL and OSL response of the $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ crystal detector{Dot is the area integral of TL peak (540K), the square is the area integral of OSL decay curves, the solid line is response function of the fitting curve}

3 结论

采用导模法(EFG)以高纯碳粉作为碳源直接加入原料生长的 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的陷阱能级深度发生变化且产生了新深度的陷阱能级。 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的热释光发光曲线在 350 K、540 K 和 689 K 附近有 3 个热释光峰,540 K 附近处为主要热释光峰,伴随 β 吸收剂量的增加,晶体中陷阱俘获的电子浓度随之增加,发光强度也随之增强,但是 3 个热释光峰温位置大致保持不变。在多次连续同剂量辐照过程中,随辐照次数的增加,主热释光峰强度随之增强,峰温向高温方向偏移。 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器的光释光衰减曲线呈指数变化,其由前期快衰减部分和后期慢衰减部分组成,快衰减部分衰减速率随着吸收剂量的增加变化很小,而慢衰减部分衰减速率则有较为明显的减慢。在低剂量范围(低于 10 Gy), $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 单晶探测器热释光剂量响应拟合曲线方程 $y=4.758\times10^6+6.147\times10^7x$ ($R^2=0.998$),光释光剂量响应拟合曲线方程

$y=2.077 \times 10^5 + 2.896 \times 10^7 x$ ($R^2=0.996$), 灵敏度不随吸收剂量而变化, 呈线性的特点。导模法(EFG)生长的 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 晶体探测器因其热释光和光释光性能在剂量学具有广阔的应用价值。

参考文献

- 1 王寿山. 热释光剂量学的研究、现状及发展 [J]. 核电子学与探测技术, 1999, **19**(2): 130-139.
WANG Shoushan. Progress and present status of thermoluminescence dosimeter [J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 1999, **19**(2): 130-139.
- 2 Akselrod M S, Kortov V S, Gorelova E A, *et al.* Preparation and properties of Alpha- $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ [J]. Radiation Protection Dosimetry, 1993, **47**(4): 159-164.
- 3 Cameron J R, Zimmerman D, Kenney G, *et al.* Thermoluminescent radiation dosimetry utilizing LiF [J]. Health Physicas, 1964, **10**(1): 25-29.
- 4 Nakajima T, Maruyama Y, Matsuzawa T, *et al.* Development of a new highly sensitive LiF thermoluminescence dosimeter and its applications [J]. Nuclear Instruments and Methods, 1978, **157**(1): 155-162.
- 5 张纯祥, 林理彬, 梁宝鉴, 等. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 单晶的热释光和光释光特性 [J]. 物理学报, 2004, **53**(1): 291-295.
Zhang C X, Lin L B, Leung P L, *et al.* Thermoluminescence and optical stimulated luminescence of undoped $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ single crystal [J]. Acta Physica Sinica, 2004, **53**(1): 291-295.
- 6 Akselrod M S, Kortov V S, Kravetsky D J, *et al.* Highly sensitive thermoluminescent anion defect $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ single crystal detectors [J]. Radiation Protection Dosimetry, 1990, **33**: 119-122.
- 7 杨新波, 李红军, 徐军, 等. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 晶体的热释光和光释光特性 [J]. 物理学报, 2008, **57**(12): 7900-7906.
YANG Xinbo, LI Hongjun, XU Jun, *et al.* Thermoluminescence and optically stimulated luminescence characteristics of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ crystal [J]. Acta Physica Sinica, 2008, **57**(12): 7900-7906.
- 8 Summers G P. Thermoluminescence in single crystal Alpha- Al_2O_3 [J]. Radiation Protection Dosimetry, 1984, **8**(1-2): 69-80.
- 9 Markey B G, Colyott L E, McKeever S W S. Time-resolved optically stimulated luminescence from $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ [J]. Radiation Measurements, 1995, **24**(4): 457-463.

Thermoluminescence and optically stimulated luminescence performance of β -radiated $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ crystal

FAN Zhipeng^{1,2} DU Jinghong¹ ZOU Yuqi² WANG Jingya² JIANG Dapeng² XU Jun²

¹(Kunming University of Science and Technology, Kunming 650093, China)

²(Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

ABSTRACT $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ crystal was grown by edge-defined film-fed grown technique (EFG) using high-purity graphite powder as carbon source. The thermoluminescence (TL) and optically stimulated luminescence properties(OSL) of low doses of β were investigated. The crystal shows three TL peaks at near 350, 540 and 689 K after irradiation with a β -rays source: the peak at near 540 K is the main TL peak, and the peak at near 689 K is the new TL peak. The depth of trap level of crystal has changes and produce trap level of new depth; the TL intensity increased with the irradiation doses, but no change is found in the position of TL peak. As the times of irradiation increase in the process of many consecutive irradiation of the same dose, the main TL peak intensity increases and the peak temperature shift to the direction of high temperature. The OSL decay curve of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ crystal consists of the early-fast component and the late-slow component. With the increasing irradiation dose, the decay rate of the early-fast component changes slightly while that of the late-slow component decreased obviously. The TL and OSL dose response of the crystal shows excellent linear characteristic in the low dose range.

KEYWORDS $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$, β -rays, Thermoluminescence, Optically stimulated luminescence properties

CLC TL81