# Основы материалов, методик и измерительной аппаратуры для ОСЛ и FNTD дозиметрии

# М.С. Аксельрод

Landauer, Inc., Crystal Growth Division, 7231/2 Eastgate St., Stillwater, OK 74074, USA

Аннотация. Методика оптически стимулированной люминесценции (ОСЛ) уже стала успешным коммерческим инструментом в индивидуальной радиационной дозиметрии, медицинской дозиметрии, диагностической интроскопии, геологической и археологической датировке. Данный обзор кратко описывает историю и основополагающие принципы используемых в ОСЛ материалов, методик и измерительной аппаратуры. Анализируются преимущества технологии и оборудования ОСЛ в сравнении с термолюминесцентной методикой. Прогресс в создании материалов и детекторов дал дорогу новым перспективным разработкам в сфере применения ОСЛ в медицинской области. Особое внимание уделено Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С как предпочтительному материалу для многих дозиметрических применений. Описаны различные аспекты теории ОСЛ, оптические и дозиметрические свойства материалов, измерительное оборудование и алгоритмы обработки данных. Следующий технологический прорыв был осуществлен с использованием флуоресцентных трековых детекторов ядерных частиц (FNTD), обладающих рядом важных преимуществ в измерении быстрых нейтронов и высокоэнергетических тяжелых заряженных частиц, которые стали новейшими средствами радиационной терапии. Рассматриваются новые кристаллы оксида алюминия, легированных полях нейтронного и гамма-излучений, медицинской дозиметрии и радиобиологических исследованиях.

Ключевые слова: Люминесцентная дозиметрия, оптически стимулированная люминесценция, флуоресцентные трековые детекторы ядерных частиц, флуоресценция, радиационная визуализация, оксид алюминия; нейтронная дозиметрия, фотонная дозиметрия.

PACS: 78.60.Lc; 78.55.-m; 29.40.Wk

# 1. ВВЕДЕНИЕ

Оптически стимулированная люминесценция (ОСЛ), термолюминесценция (ТЛ) и термостимулированная экзоэлектронная эмиссия (ТСЭЭ) находятся среди многих известных стимулированных явлений в конденсированной среде, которые могут использоваться для пассивной интегрирующей твердотельной дозиметрии [1-5]. Детектор работает и как датчик, и как накопитель информации (Рис. 1). Бэдж-дозиметр не требует наличия батареи или электроники, и он всегда собирает и надежно хранит дозиметрическую информацию (он всегда включен!). Это гарантирует безотказную регистрацию юридически-значимого значения дозы. Упрощенное описание процесса, происходящего при считывании данных, может быть проиллюстрировано плоской зонной диаграммой, представленной на Рис. 2. Точечные дефекты в ТЛ- и ОСЛ-материалах, образованные на этапах роста кристалла или твердофазного спекания, способны улавливать электроны и дырки, появляющиеся в процессе облучения, и, таким образом, могут хранить дозиметрическую информацию в течение относительно долгого времени. Во время процесса считывания данных, электроны или дырки высвобождаются из ловушек (метастабильные состояния) посредством света или тепла, а затем рекомбинируются со своими дополняющими эквивалентами, создавая люминесцентные фотоны. Обычно количество излученных фотонов пропорционально поглощенной дозе, и диапазон измерений дозы может достигать 6-7 порядков. В случае ТСЭЭ, свободные электроны излучаются с поверхности детектора.

До недавнего времени, термолюминесцентная дозиметрия (ТЛД) являлась наиболее популярной дозиметрической методикой, когда использовались относительно недорогие пассивные интегрирующие детекторы на основе кристаллических и стекольных материалов (таких как LiF:Mg,Ti, CaF:Mn, CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, алюмофосфатные стекла и др.) [3]. Упакованные надлежащим образом, ТЛ- или ОСЛ-детекторы, в сочетании с несколькими разными фильтрами, делают бэдж-дозиметры весьма недорогой альтернативой активным электронным дозиметрам, с очевидным недостатком, связанным с невозможностью мгновенно отображать дозу и сигнализировать о превышении предварительно заданного порогового значения мощности дозы. ТЛД используется для контроля облучения персонала и проверки терапевтической дозы. Это – методика разрушающего контроля, в которой сигнал полностью удаляется из детектора, поскольку считывание информации требует нагрева детектора. Более того, она является медленной, кроме случая, когда используется лазерный нагрев [6], но лазерный нагрев делает и без того сложные ТЛД-считыватели чрезмерно дорогостоящими. Кроме этого, ТЛ не очень хорошо подходит для формирования изображений с высоким пространственным разрешением.



РИСУНОК 1. Принцип работы люминесцентного детектора.

РИСУНОК 2. Зонная диаграмма электронных процессов во время считывания ТЛ-, ОСЛ- и ТСЭЭ-данных.

Известная на протяжении десятилетий, ОСЛ стала успешной коммерческой методикой дозиметрии после разработки очень чувствительного люминесцентного материала из оксида алюминия (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C) [7-9], а также импульсной методики ОСЛ (ИОСЛ) [10-12]. В отличие от ТЛ, ОСЛ является полностью оптической методикой, которой не требуется нагрев детектора, а недавно разработанные сверх яркие светоизлучающие диоды (LED) позволяют сделать конструкцию ОСЛ-считывателя очень простой и компактной. Благодаря высокой люминесцентной чувствительности ОСЛ-материалов, нет необходимости опустошать все дозиметрические ловушки одновременно. Точная доставка стимулирующего света позволяет осуществлять сразу несколько считываний с такой же точностью и минимальным истощением ловушек. В результате, реализуется быстрый и практически неразрушающий способ считывания данных. Поскольку не требуется нагрева ОСЛ-дозиметра, нет вредных воздействий, таких, как «температурное тушение» люминесценции [13,14], и можно реализовать простую конструкцию дозиметра, используя процесс изготовления типа «порошок в пластмассе», с миллионами ОСЛ-детекторов, имеющих одинаковую чувствительность. Способность измерять очень низкие дозы фотонов и заряженных частиц (~1µGy), при наличии семи порядков полезного диапазона измерения дозы перевешивает недостаток ОСЛ-технологии – необходимость светонепроницаемой упаковки. Для любой технологии детекторов необходима упаковка, а также наличие пластиковых и металлических фильтров для дискриминирования по энергии фотонов, и это не является чемто нежелательным. Кроме этого, светочувствительность позволяет быстро произвести сброс дозиметра до стертого состояния, а также быстро начать повторно использовать дозиметр без нагрева, что зачастую приводит к ухудшению чувствительности в ТЛ-материалах. Формирование изображений высокого разрешения с использованием ОСЛ уже широко используется в цифровой радиографии [15], ОСЛвизуализация и обработка изображений была успешно реализована для распознавания статических и динамических условий облучения, а также для исследования аномальных облучений в индивидуальном дозиметрическом контроле [16]. Еще одно уникальное применение ОСЛ в медицинской дозиметрии в процессе радиационной терапии состоит в проведении удаленных измерений в режиме реального времени с использованием оптико-волоконной методики считывания данных [17-25], и оно подробно описано Д-ром Клаусом Андерсеном в другом докладе, опубликованном в данной книге [26].

Как обычно, не существует одного идеального дозиметра для всех применений. Одной из наиболее сложных дозиметрических задач является нейтронная дозиметрия. Тепловые (<0.5 эВ) и промежуточные (0.5 эВ- 10 кэВ) нейтроны довольно легко измерить с использованием ТЛ- и ОСЛ-детекторов, содержащих изотопы <sup>6</sup>Li and <sup>10</sup>В [3,27,28], но дозиметрия быстрых нейтронов (>10 кэВ) до сих пор остается одной из наиболее трудных задач. Новейшая технология, использующая флуоресцентные трековые детекторы ядерных частиц (FNTD), является новой методикой люминесцентной дозиметрии, способной заменить пластиковые трековые детекторы ядерных частиц (PNTD) в нейтронной дозиметрии и спектроскопии с линейным переносом энергии (ЛПЭ-спектроскопии) тяжелых заряженных частиц [29-37]. Новая технология сочетает новый люминесцентный кристалл оксида алюминия, легированный углеродом и магнием (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg) [38,39] с методом флуоресцентной конфокальной микроскопии с лазерным сканированием [40]. Изображения следов формируются в виде ярких объектов на темном фоне в флуоресцентном контрасте и обрабатываются цифровым способом.

# 1.1 Краткая история ОСЛ

ОСЛ впервые была предложена в качестве инструмента дозиметрии в 1950-х и 1960-х годах [41,42]. Основными препятствиями для применения ОСЛ, обнаруженными в то время, были следующие: сильное затухание в случае сульфидных материалов с относительно узкой шириной запрещенной энергетической зоны, таких как MgS, CaS и SrS, легированных редкоземельными ионами, такими как Sm и Eu. В 1980-х годах методика ОСЛ стала популярной в сообществах, занимающихся археологической и геологической датировкой, в качестве метода определения дозы в природных материалах, таких как кварц и полевой шпат [43,5]. В качестве сенсора для медицинских оптико-волоконных систем ОСЛ-дозиметрии был предложен плавленый кварц, легированный Cu<sup>+</sup> [23-25]. Были успешно разработаны фосфорные материалы для формирования изображений, такие как BaBrF:Eu [15], Y2SiO5:Ce,Sm [44], фосфат бария, легированный редкоземельными элементами [45], KBr:In [46], а также методики формирования изображений, основанные на их оптической стимуляции с помощью лазеров, и некоторые из них сейчас используются в цифровой диагностической радиографии. Рентгенографические пластины на основе активированных европием флюорохолидов бария и стронция (BaBrF:Eu, BaClF:Eu и Ba(1-x)SrxBrF:Eu), а также системы считывания данных, сейчас на коммерческой основе производятся такими компаниями, как Fuji, Siemens, AGFA, Kodak, General Electric и другими производителями медицинского оборудования. Компьютерные радиографические системы, которые, в принципе, основаны на ОСЛ-методике, демонстрируют отличную работу по формированию изображений, но неспособны выполнять точные дозиметрические измерения, в основном изза низкой термической стабильности ловушек, что приводит к относительно сильному затуханию. Дополнительные трудности вызывает высокий эффективный атомный номер BaBrF:Eu, что является благоприятным для рентгеновской диагностической визуализации, но создает значительные трудности для точного измерения значений дозы в определенных радиотерапевтических приложениях.

Недавно в Германии была разработана новая система ОСЛ-дозиметрии на основе материала Thermolox<sup>™</sup> 995 ВеО, который ранее исследовался в качестве материала ТЛ- и ТСЭЭ-детектора [47-50]. В качестве фосфорного материала для ОСЛ, испускающего УФ-свечение при стимулировании синим светом [14,51-54], использовались керамические чипы промышленного качества.

Еще один тип оптически-стимулируемого процесса переноса заряда, известный как фото-перенесенная термолюминесценция (ФПТЛ), исследовался в различных материалах - CaSO<sub>4</sub> [55], CaF<sub>2</sub>:Mn [56,57], Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C [58], и был предложен в качестве инструмента дозиметрии. Однако он не стал полезной методикой из-за практических трудностей и низкой чувствительности.

Идеальный ОСЛ-материал должен обладать несколькими, зачастую противоречивыми, характеристиками. Он должен иметь глубокие термически стабильные ловушки для долговременного хранения дозиметрической информации без существенного затухания. В то же время, эти ловушки должны быть оптически доступными при использовании источников света с длинами волн, четко отделенными от спектров излучения центров рекомбинации. Эта концепция подразумевает, что нет фундаментальной разницы между ТЛ- и ОСЛ-материалами. В целом, все эффективные дозиметрические фосфорные материалы могут проявлять свойства и ТЛ, и ОСЛ. Настоящее преимущество некоторых из этих материалов по сравнению с другими просто заключается в правильной комбинации глубин тепловой и оптической энергии ловушек, хорошем разделении спектров излучения и стимулирования, а также в большом сечении фотоионизации ловушек.

Индивидуальные кристаллы анион-дефицитных Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С, изначально разработанные в качестве высокочувствительного ТЛ-материала [7], как оказалось, хорошо удовлетворяют всем этим требованиями, и поэтому их стали широко использовать в качестве ОСЛ-детекторов. Компанией «Landauer Inc.» была разработана [8] и коммерчески реализована в технологии и аппаратуре Luxel<sup>TM</sup> новая импульсная ОСЛметодика (ИОСЛ) радиационной дозиметрии с использованием анион-дефицитных Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С. В дополнение к эффективному распознаванию стимулирующего и излученного света с использованием комбинации нескольких оптических фильтров, используется методика временной дискриминации, когда лазерное стимулирование является импульсным, а ОСЛ измеряется только во временные интервалы между импульсами лазера [12]. Исследования ОСЛ-сигналов от Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С показали, что они являются термически стабильными и воспроизводимыми, с возможностью обнаружения доз гамма-излучения в 1 мкГр. Для «стирания» информации из материала и его приготовления к повторному использованию может применяться технология оптического высвечивания. Люминесцентный Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С материал и ОСЛ-методика также используются для визуализации радиационных полей [10]. Последним дополнением в семействе полезных дозиметрических материалов в ОСЛ стал ВеО [14, 51-54].

## 2. ТЕОРИЯ ОСЛ [4,5,21]

#### 2.1 Стимулированная (вынужденная) люминесценция

Поглощение энергии от источника ионизирующей радиации изоляционным или полупроводниковым материалом приводит к возбуждению свободных электронов и свободных дырок, с последующим поглощением этих электронных частиц на дефектах (центрах захвата заряда) внутри материала. После снятия возбуждения образец может быть стимулирован таким образом, что поглощенная энергия приведет к высвобождению носителей заряда одного знака, которые затем смогут рекомбинироваться с носителями заряда противоположного знака (см. Рис. 2). Поглощение излучения и возбуждение заряда (в основном, посредством Комптоновского эффекта, или фотоэлектронного эффекта, в зависимости от энергии и типа излучения) приводят к возмущению системы от состояния термодинамического равновесия до метастабильного состояния. Последующее поглощение внешней энергии метастабильным захваченным зарядом приводит к стимулированной релаксации системы обратно к ее равновесному режиму. В процессе релаксации происходит рекомбинация электронного заряда и, если эта рекомбинация является излучающей, появляется люминесценция. В ОСЛ, источником стимулирующей энергии является свет (УФ, видимый или инфракрасный). Обычно, интенсивность люминесценции контролируется в виде функции времени, что приводит к построению характеристической кривой зависимости люминесценции от времени. Таким образом, исходная интенсивность, или интеграл кривой «люминесценция-время», связан с количеством захваченного заряда, который, в свою очередь, пропорционален (в идеальном случае) начальной дозе поглощенного излучения. Это – основа для использования ОСЛ в радиационной дозиметрии.

# 2.2 Обобщенное математическое описание оптически стимулированной люминесценции

В ОСЛ, интенсивность люминесценции *I* пропорциональна скорости распада метастабильных состояний, так что:

$$I(t) = \left| \frac{d\mu(t)}{dt} \right|. \tag{1}$$

Для *оптической стимуляции* захваченного заряда, вероятность оптической стимуляции *p* при данной длине волны  $\lambda$  составляет:

$$p(E_o) = \Phi \sigma(E_o), \tag{2}$$

где  $\Phi$  - интенсивность оптической стимуляции,  $\sigma(E_o)$  – сечение фотоионизации для взаимодействия метастабильного состояния с падающим фотоном, а  $E_o$  – пороговое значение энергии оптической стимуляции, необходимой для высвобождения заряда и возврата системы в равновесное состояние. В приведенном выше представлении  $\lambda$  и  $\Phi$  являются фиксированными значениями, не зависящими от времени.

Различные варианты стимуляции проиллюстрированы на Рис. 3 и 4. В случае оптической стимуляции, когда ловушки опустошаются с использованием фиксированной длины волны  $\lambda$  и постоянной интенсивности подсветки  $\Phi$ , регистрируемая люминесценция известна как *ОСЛ с непрерывным излучением*, или ОСЛ-НИ (Рис. 3 и 4а). Однако, зависимость *p* от времени может быть введена посредством сканирования вышеприведенных условий во времени, например,  $\Phi(t)$  или  $\lambda(t)$ . Таким образом, в случае линейного повышения интенсивности оптической стимуляции при фиксированной длине волны:

$$\Phi(t) = \Phi_0 + \beta_{\Phi} t , \qquad (3)$$

где  $\beta_{\Phi} = d\Phi/dt$ . ОСЛ, регистрируемая таким образом, известна как *ОСЛ с линейной модуляцией*, или ОСЛ-ЛМ (Рис. 4b) [59].

Можно представить и другие варианты, в которых интенсивность модулируется нелинейными способами. Например, стимуляция может быть импульсной, при которой at  $\varphi(t) = \varphi_0$  for  $t_0 \le t < t_0 + \Delta t$ , и  $\varphi(t) = 0$  for  $t_0 + \Delta t \le t < t_0 + \tau$ , где  $\Delta t$  – длительность импульса, а  $\tau$  - период. Такой вариант известен как импульсная ОСЛ, или ИОСЛ (Рис. 3с) [10,11].



РИСУНОК 3. Временная диаграмма люминесцентного сигнала, произведенного ОСЛ-детектором во время облучения (RL) и при условии постоянной оптической стимуляции (ОСЛ).

РИСУНОК 4. Схематическое представление трех основных методов стимуляции ОСЛ, а именно: ОСЛ-НИ, ОСЛ-ЛМ и ИОСЛ [22].

Импульсная стимуляция, или режим ИОСЛ (Рис. 4с), является самой последней и важной инновацией в технологии ОСЛ [10,12]. В режиме НИ, разделение стимулированного и излучаемого света требует серьезной оптической фильтрации, когда требуется измерять единичные фотоны люминесценции в присутствии 10<sup>20</sup>- 10<sup>22</sup> фотонов света стимуляции. Такая оптическая фильтрация уменьшает количество переданной люминесценции и снижает общую чувствительность системы считывания данных. Импульсная стимуляция, когда люминесценция измеряется после окончания импульса стимуляции, добавляет в ОСЛ методику дискриминации по времени и позволяет значительно снизить оптическую фильтрацию, повышает чувствительность считывателя и улучшает отношение «сигнал-шум» (SNR) в оптических измерениях. Но этот вариант стимуляции применим только к фосфорным материалам ОСЛ с относительно длинной продолжительностью люминесценции, таких как Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С, что будет проиллюстрировано ниже.

#### 2.3 Сечение фотоионизации

Сечение фотоионизации  $\sigma(E_o)$  является, возможно, самым важным параметром, определяющим применимость ОСЛ-материала и устойчивость конкретной ловушки во время оптической стимуляции.

Коэффициент поглощения для оптического перехода в зоне дефектов при энергии оптической стимуляции *hv* может быть записан, как:

$$\alpha(h\nu) = n(E_o)\sigma(h\nu, E_o), \tag{4}$$

где  $n(E_o)$  – концентрация дефектов, каждый из которых обладает порогом энергии оптической ионизации  $E_o$ . Зависимость коэффициента поглощения  $\alpha(hv)$  как функции энергии стимуляции hv должна иметь форму с острым краем, поскольку форма линии поглощения содержит вклады от всех соответствующих непрерывных состояний в диапазоне, в котором происходит возбуждение электрона [60]. Вслед за переходом, заряд на дефекте изменится на один заряд электрона, и может произойти существенная релаксация решетки. Это также верно и во время обратного процесса [61].

С использованием ряда предположений относительно потенциальной энергии в области дефекта были выведены несколько выражений спектральной зависимости оf  $\sigma(E_o)$ , а именно  $\sigma(hv, E_o)$ . Эти, а также другие теоретические соображения, включая модели и одной и несколькими ловушками, подробно рассмотрены Боттер-Дженсоном и др. [5].

# 3. ОКСИД АЛЮМИНИЯ КАК МАТЕРИАЛ ДЛЯ ОСЛ- И FNTD-ДЕТЕКТОРОВ

Поскольку α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С стал наиболее широко используемым материалом для ОСЛ-детекторов, в дальнейшем мы будем описывать его свойства, спектроскопию, аппаратуру и наиболее важные применения. Оксид алюминия, легированный Mg (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg), является новой разновидностью люминесцентных кристаллов, которые формируют ядро новой технологии флуоресцентных трековых детекторов ядерных частиц, и его оптические и дозиметрические свойства будут рассмотрены во взаимном сравнении с Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C.

## 3.1 Исторический обзор Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в радиационной дозиметрии

Точечные дефекты в форме вакансий кислорода и алюминия (центры типов F- и V- соответственно) и различные включения использовались в различных формах α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, что в начале 1950-х годов было представлено, как ТЛД-дозиметр. Монокристаллы Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, легированного Ti, были впервые предложены в качестве ТЛД-материала Рике и Дэниелсом [62] и впоследствии исследованы Бакманом [63] и МакДугаллом и Рудиным [64]. Доклад о керамических таблетках Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, легированного Si и Ti, которые были обработанны в кислородно-ацетиленовом пламени, делали Мета и Сенгупта [65]. Освай и Биро [66] сделали всестороннее исследование керамических ТЛД-таблеток, сделанных из Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Mg,Y, включения Cr испытывались Лапразом и др. [67], а комбинация двух включений Cr и Ni в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> была исследованы Покорным и Ибарой [68].

Однако, как люминесцентный материал оксид алюминия не был достаточно чувствительным до представления анион-дефицитного оксида алюминия, легированного углеродом (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C). Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C был изначально разработан Аксельродом и др. [7-9] в конце 1980-х годов в качестве ультра-чувствительного ТЛД-материала, а теперь считается чувствительным и практичным ОСЛ-материалом [10-12]. Он обладает линейной светоотдачей как функцией дозы радиации 7 порядков, без затухания информации благодаря глубокой природе ловушек и чрезвычайно хорошей устойчивостью к внешним воздействиям. Длительное время жизни люминесценции (35 мс) F-центров в этом материале успешно использовалась в методике дискриминации по времени в ИОСЛ [12].

#### 3.2 Свойства дефектов в оксиде алюминия

Кристаллы  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Рис. 5) обладают жесткой, слегка искаженной гексагональной плотноупакованной O<sup>2-</sup> -подрешеткой, в которой ионы Al<sup>3+</sup> занимают две из каждых трех октаэдрических пор (Рис. 6). Каждый ион O<sup>2-</sup> окружен четырьмя тетраэдральными ближайшими соседями - ионами Al<sup>3+</sup>. Как указано в разделе 2 выше, процесс хранения информации о начальной дозе в дозиметрическом материале состоит в электронной ионизации, за которой идет последующий захват возбужденных электронов или дырок центрами захвата. Таким образом, для эффективного хранения дозиметрической информации необходимо, чтобы кристаллы Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> содержали по крайней мере два типа дефектов, захватывающих как электроны, так и дырки. Однако, эффективное производство люминесценции требует не только высокой концентрации ловушек, для него

также необходимо наличие эффективных путей излучательной рекомбинации для электронов или дырок, производящих фотоны. В случае с оксидом алюминия, инновация состояла во введении нескольких типов дефектов с кислородной вакансией: единичных вакансий в случае с Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C (Рис. 7), и комплексных дефектов с двойными вакансиями в случае с Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg (Рис. 8).



**РИСУНОК 5**. Монокристаллы оксида алюминия, легированного углеродом и магнием, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg, имеющие зеленую окраску (слева), и легированного только углеродом, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C (справа).



**РИСУНОК 7.** Модель заряда F<sup>+</sup>-центра, компенсированного включением углерода [22].



РИСУНОК 6. Структура кристаллов α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> обладает жесткой, слегка искаженной гексагональной плотноупакованной O<sup>2-</sup> - подрешеткой, в которой ионы Al<sup>3+</sup> занимают две из каждых трех октаэдрических пор [22].



РИСУНОК 8. Модель комплексного дефекта F<sub>2</sub><sup>2+</sup>(2Mg)-центра, состоящего из двух кислородных вакансий (двух F<sup>+</sup> центров) и заряда, компенсированного двумя ионами Mg<sup>2+</sup> [38].

# 3.3 Формирование дефектов и оптическая спектроскопия центров окраски в Al2O3:C

Кристаллы  $Al_2O_3$  могут быть произведены с использованием различных методов выращивания кристаллов, наиболее распространенными из которых являются метод Чохральского, метод выращивания профильного кристалла (EFG или метод Степанова), метод Киропулоса, метод Бриджмена, метод теплообмена (HEM). Для достижения высокой концентрации кислородных вакансий, кристаллы необходимо выращивать в высоковосстановительной атмосфере при низком парциальном давлении кислорода. В таких условиях стабильные кислородные вакансии создаются в процессе «субтрактивного окрашивания». Занятие кислородной вакансии двумя электронами приводит к появлению нейтрального F-центра, в то время как ее занятие одним электроном формирует положительно заряженный (относительно решетки) F<sup>+</sup>-центр. F-центры могут быть идентифицированы по полосам сильного поглощения при 205 нм, приписываемым переходам

в F<sup>+</sup>-центрах [70]. Дефекты с кислородными вакансиями также могут быть произведены в кристаллах Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> посредством облучения нейтронами или высокоэнергетическими электронами, а также методом термохимического восстановления (аддитивного или субтрактивного окрашивания). Как известно, F- и F<sup>+</sup>- центры играют ключевую роль в получении высокой люминесцентной отдачи (ТЛ и ОСЛ) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C [7,9].

Причина успеха Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С как практического ОСЛ-материала для детекторов излучений кроется в уникальной комбинации нескольких важных параметров. Основным фундаментальным преимуществом Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С в качестве радиационного детектора является то, что он обладает широкой (9.5 эВ) запрещенной энергетической зоной, позволяющей создавать глубокие и термически стабильные ловушки и центры окраски. Полосы оптического поглощения при 205, 230 и 255 нм (Рис. 9), приписываемые F- и F<sup>+</sup>-центрам, демонстрируют высокую концентрацию кислородных вакансий в кристаллах Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С. Кристаллы Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, легированного Mg, обладают даже большим количеством F<sup>+</sup>-центров, необходимых для компенсации зарядов ионов Mg<sup>2+</sup> [38]. Исследования фото-преобразований F- и F<sup>+</sup>-центров в процессе облучения, высвечивания и отжига до различных температур позволяют определить тип носителей заряда, участвующих в процессах ТЛ, ОСЛ и фотопереноса [8, 71,72].





**РИСУНОК 9.** Спектры оптического поглощения кристаллов Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С и Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С,Mg, демонстрирующие значительный рост концентрации F<sup>+</sup>-центров в кристаллах, легированных Mg, и появление новых полос поглощения, приписываемых комплексным дефектам F<sub>2</sub>-типа. Вставка иллюстрирует фотохромное преобразование F<sub>2</sub><sup>2+</sup>(2Mg)-центра [38].

РИСУНОК 10. 2-х мерный термолюминесцентный спектр кристалла Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg, в котором преобладают излучения Fцентра (420 нм) и F<sup>+</sup>-центра (330 нм).

F-центры создают люминесценцию при 420 нм с длинным (35 мс) временем жизни, в то время как излучение F<sup>+</sup>-центра приходится на 330 нм (Рис.10) и имеет чрезвычайно короткое время жизни (<7 нс). Было обнаружено, что рост концентрации F<sup>+</sup>-центров в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С приводит к увеличению чувствительности ОСЛ и ТЛ. Было высказано предположение о том, что кислородные вакансии в форме F<sup>+</sup>-центров создаются в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, легированном углеродом, во время роста кристалла в высоковосстановительной атмосфере в результате компенсации заряда двухвалентного иона углерода, заменяющего трехвалентный ион Al<sup>3+</sup> [7]. Одна из возможных конфигураций данного дефекта изображена на Рис. 7. Важно упомянуть эффект температурного гашения люминесценции F- и F<sup>+</sup>-центров, который снижает выход ТЛ в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> при большой скорости нагрева. Эванс и Стейплбрюк [69] продемонстрировали этот эффект для F<sup>+-</sup>центров, а Аксельрод *и др.* [13] - для F-центров. Однако, на процесс ОСЛ эффект температурного гашения приросту светоотдачи по сравнению с ТЛ [73,74]. Для установления природы ловушек и центров рекомбинации в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С использовались спектроскопия оптического поглощения и флуоресцентная спектроскопия [8,72,75,76].

Легированный Mg оксид алюминия с комплексными дефектами обладает гораздо большим количеством оптических диапазонов. Фотохромные и радиохромные преобразования в таком кристалле являются более сложными, но при этом привносят больше интересной физики и дают возможности для новых применений [29-39]. Рисунок 11 показывает предполагаемое распределение дефектов по принудительно-возбужденным эмиссионным спектрам в кристаллах Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg, а также радиохромные преобразования этих дефектов

после облучения. В дополнение к дефектам с одиночной вакансией (F- и F<sup>+</sup>-центры), преобладающим в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С, были определены и приписаны к различным принудительно-возбужденным эмиссионным спектрам и полосам поглощения дефекты с двойной вакансией (обозначаемые как центры типа F<sub>2</sub>), связанные и не связанные с примесными ионами Мg. Самое важное преимущество этого нового кристалла для практического применения состоит в том, что эти центры окраски проходят эффективные радиохромные преобразования. Как накопители заряда, они являются термически глубокими и стабильными вплоть до 600 °C. Время жизни их люминесценции коротко (9 нс для F2<sup>2+</sup>(2Mg)-центра, излучающего при 520 нм и 75 нс для F2<sup>+</sup>(2Mg)-центра, излучающего при 750 нм), что создает возможность для быстрого лазерного сканирования в приложениях формирования изображений [38]. Это почти в миллион раз быстрее, чем 35 мс время жизни люминесценции of F-центра в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C, что, в свою очередь, имеет важное практическое преимущество для дискриминации по времени в методике ИОСЛ [12]. Дефекты с двойной вакансией являются оптически стабильными, и их можно неоднократно опрашивать без фотоионизации, что дает возможность проводить неразрушающее считывание информации с использованием внутрицентровой флуоресценции (см. далее в разделе 5.1 и Рис. 34), или, если она вызвана облучением, она называется радиофото-люминесценцией (РФЛ). Это отличает ее от процесса ОСЛ, включая таковой в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С, где вслед за фотоионизацией ловушек (оптической стимуляцией) идет рекомбинация заряда на центрах люминесценции, что приводит к разрушающему считыванию информации. Оба физических процесса – внутрицентровая флуоресценция и рекомбинационная люминесценция в ходе считывания информации ОСЛ, обладают своими практическими преимуществами и недостатками.



Дозиметрический ТЛ-пик в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С, измеряемый при скорости нагрева 5К/с, находится на 450 К (Рис. 14) [7,11]. Энергия термической активации, полученная из анализа ТЛ-пика, оценочно равна 1.5 эВ. Электронная ловушка, связанная с этим ТЛ-пиком, является очень стабильной при температурах, близких к комнатной, причем измеренная скорость ослабления составляет меньше 5% в год. В то же время оптическая глубина этой ловушки, определенная из измерений фотостимулированной экзоэлектронной эмиссии, не очень большая и равна 2.2 эВ [9]. Это определяет диапазон длин волн, подходящих для оптической стимуляции [71]. Хотя наиболее эффективной длиной волны для ОСЛ-стимуляции Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С является синяя область [75], необходимость различать стимулирующий свет от широкого излучения F-центра, сосредоточенного вокруг 420 нм (Рис. 10) определяет необходимость использования зеленой стимуляции с такими источниками света, как вторая гармоника (532 нм) лазера Nd:YAG, линия 514 нм Ar-ионного лазера или светодиоды InGaN с пиковой длиной волны на 527 нм. В реальных ОСЛ-считывателях, одиночные фотоны люминесценции обнаруживаются в присутствии до  $10^{20}-10^{22}$  фотонов стимулирующего света, поэтому требуется хорошее оптическое разделение и фильтрация.

Высокая чувствительность к радиации (определяемая как количество испущенных фотонов люминесценции на единицу поглощенной дозы) позволяет системе ОСЛ-дозиметрии на основе Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С достичь значения нижнего предела обнаружения менее 1 мкГр [7,12], а также 7 порядков полезного диапазона линейной зависимости определения доз (Рис. 12 и 13), который может быть достигнут простым методом измерения при автоматическом изменении интенсивности стимулирующего света [12]. Низкий фоновый сигнал при оптической стимуляции, а также приемлемое сечение фотоионизации ловушек на

выбранной длине волны находятся среди важных дозиметрических параметров Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C. – это стираемый ОСЛ-материал, и он может неоднократно повторно использоваться после оптического высвечивания или термического отжига. Кинетика высвечивания не является кинетикой первого порядка, а ослабление ОСЛ не может быть описано одной экспонентой (Рис. 16). Вероятно, это – результат относительно широкого распределения энергий оптической активации [75]. Заполнение глубоких ловушек при облучении большими дозами [7,8,72,76] может создать определенные сложности при выполнении полного оптического высвечивания, а также может потребовать высокотемпературный отжиг, чтобы порностью обнулить детектор и снизить фоновый ОСЛ-сигнал, вызванный так называемым «темновым переносом», или утечкой из глубоких ловушек. Эти процессы темнового переноса хорошо известны в ТЛ-материалах [3]. Не всегда возможно опустошить глубокие ловушки в оксиде алюминия, помещенном в пластик (см. раздел измерительной аппаратуры ниже). Поскольку ОСЛ-детекторы на основе порошка Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C в пластмассе являются такими недорогими, нет необходимости повторно использовать такой дозиметр после облучения большой дозой.

Было показано, что эти же ловушки в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С отвечают за производство и ОСЛ, и ТЛ. Единичный ТЛпик при примерно 450 К получается после гамма-облучения и УФ-возбуждения (хотя форма ТЛ-пика после УФ-облучения не такая, как после гамма-облучения). Также докладывалось о двух типах мелких ловушек, ответственных за ТЛ-пики при 260 и 310 К [9,11], но их концентрация в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С-материале ОСЛ-качества была существенно снижена (Рис. 14 и 22).



РИСУНОК 12. Зависимость дозы ИОСЛсигнала от Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С, демонстрирующая 7 порядков полезного диапазона дозы от 1 мкГр до 100 Гр [10].



РИСУНОК 13. Зависимость ОСЛ-дозы детекторов Luxel на основе Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С от бета-излучения. Исходная интенсивность ОСЛ соответствует первым 3 с интеграции, а полная ОСЛ соответствует интеграции в течение 300 с [72].

Существование как мелких, так и глубоких ловушек в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С влияет на работу материала в качестве ОСЛ-детектора. Например, с использованием ТЛ-методики после облучения при температуре жидкого азота (Рис. 14) были исследованы мелкие ловушки в различных типах Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С, созданных для приложений ТЛ, ОСЛ и «задержанной» ОСЛ (DOSL). Повторный захват делокализованных зарядов в мелких ловушках снижает вероятность радиоактивной рекомбинации и замедляет ослабление ОСЛ. Мелкие ловушки также вносят в ОСЛ-измерения температурную зависимость, так что в случае стимуляции при различных температурах получаются различные формы кривых ослабления ОСЛ [11].



РИСУНОК 14. ТЛ от трех различных типов кристаллов Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С с низкой, средней и высокой концентрацией мелких ловушек. Для ОСЛ-приложений желательна минимальная концентрация мелких ловушек [11].



РИСУНОК 15. Глубокие ловушки в Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С проявляют себя как ТЛ-пики, полученные после УФ-подсветки при 205 нм в условиях повышенной температуры, измеренные через интерференционные фильтры 340 and 410 нм [77].

С использованием методов фото-перенесенной термолюминесценции [8,76], высокотемпературной ТЛ [77] и фотопроводимости [75] было установлено существование нескольких эффективных глубоких ловушек с температурой делокализации, приблизительно равной 680, 770, 920 и 1170 К. Одним из способов определения тепловой энергии («глубины») глубоких ловушек является измерение ТЛ после облучения при высокой температуре, как показано на Рис. 15 [77]. Глубокие ловушки влияют на процесс ОСЛ различными способами. Во-первых, они претендуют на носители заряда в процессе облучения. Это, в свою очередь, приводит к изменению чувствительности ОСЛ по мере наполнения глубоких ловушек во время облучения. Увеличивается или уменьшается чувствительность по мере наполнения глубоких ловушек зависит от того, являются ли глубокие ловушки ловушками дырок, или ловушками электронов, а как известно, оба типа присутствуют в этом материале. Юкихара и др. [76] продемонстрировали, что в некоторых образцах доминируют ловушки дырок, и таким образом чувствительность после заполнения глубокой ловушки становится меньше по сравнению в состоянием, когда все ловушки пусты. Это приводит к сублинейности дозового отклика при высоких значениях дозы. И наоборот, в образцах, в которых глубокие электронные ловушки преобладают над глубокими ловушками дырок, чувствительность после заполнения глубоких ловушек увеличивается, и дозовая зависимость демонстрирует сверхлинейное поведение (см. Рис. 13). Вовторых, (как уже отмечалось) глубоки ловушки (особенно, электронные ловушки) отвечают за фото-перенос заряда и остаточных ОСЛ-сигнал, от которого трудно избавиться с использованием оптического высвечивания, когда для стимуляции используются длины волн, которые обычно используются при измерениях ОСЛ.

Еще одной важной характеристикой ОСЛ с использованием Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С является ее способность к надежному повторному считыванию (Рис. 16 и 17). Таким образом, дозу можно неоднократно независимо измерять одним и тем же детектором. Это возникает из высокой чувствительности метода, когда при каждом ОСЛ-измерении опустошается только часть доступного захваченного заряда. Количество заряда, накопленного в дозиметрических ловушках, настолько велико, что появляется возможность точно считать значение дозы, используя всего лишь 0.2% от полного ОСЛ-сигнала. Кинетика истощения остается постоянной для низкого диапазона значений доз (вплоть до 1 Гр) и позволяет проводить точную повторную оценку дозы, после внесения поправки на частичное истощение ловушек [12]. С точки зрения практических дозиметрических применений эта характеристика ОСЛ-технологии позволяет проводить переоценку значений дозы почти неразрушающим способом.



РИСУНОК 16. Кривая спада ОСЛ от Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С обладает воспроизводимой формой для значений дозы меньше 1 Гр, и возможна многократная переоценка значения дозы с той же точностью, что и при первом считывании [12].



РИСУНОК 18. При высоких дозах кривая спада ОСЛ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С меняет форму, что позволило разработать методику измерения ЛПЭ тяжелых заряженных частиц [78].



**РИСУНОК** 17. Воспроизводимость нескольких повторных считываний ОСЛ при различных дозах с использованием стимуляции 1 с и функции поправки на истощение из Рис. 16 [12].



РИСУНОК 19. Энергетический ОСЛ- и ОСЛН-отклик дозиметров InLight<sup>™</sup> на основе Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С. ОСЛНматериалы – это чувствительный к нейтронам композитные материалы, состоящие из Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С и <sup>6</sup>Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, которые работают в конфигурации альбедо. Все измерения проводятся детекторами, покрытыми 300 мг/см<sup>2</sup> пластика [79].

Оксид алюминия не является тканеэквивалентным материалом с эффективным атомным номером (Z<sub>eff</sub>), равным 10.2, и плотностью 3.96 г/см<sup>3</sup>, что выше, чем для ткани и воды. Более высокие массовые коэффициенты поглощения данного детекторного материала приводят к тому, что ОСЛ-детектор слишком сильно реагирует при низкой энергии фотонов по сравнению с гамма фотонами <sup>137</sup>Cs с энергией 662 кЭв (Рис. 19). Данная зависимость от энергии на самом деле является положительным фактором для выбора фильтров в конструкции дозиметра, для различения фотонов с низкой и высокой энергией и для алгоритма вычисления эквивалентной дозы.

До недавнего времени ОСЛ-детекторы на основе Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С использовались для фотонов и бета-излучения. Измерения нейтронов с использованием ОСЛ стали возможными с созданием чувствительного к нейтронам материала (ОСЛН), в котором гранулы Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С покрыты Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, обогащенным изотопом <sup>6</sup>Li [27,28]. Новый фосфорный материал является 50:50% смесью Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С и <sup>6</sup>Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, получаемый сплавлением двух соединений, вслед за чем он разбивается и измельчается. Окончательную форму ОСЛН-датчик получает после печати из ОСЛН-порошка, смешанного с полимерным связующим на пластиковой подложке, аналогично тому, как в массовых количествах производятся обычные ОСЛ-детекторы. ОСЛН-детекторы в основном чувствительны к низкоэнергетическим нейтронам, и их зависимость чувствительности от энергии нейтрона соответствует сечению ядерной реакции ( $n,\alpha$ ) нейтронов на <sup>6</sup>Li. Рисунок 20 показывает результаты, полученные после облучений моноэнергетическими нейтронами в лабораториях NPL (Великобритания) и JRC-IRMM (Бельгия).



РИСУНОК 20. Нормализованный ОСЛ-сигнал как функция энергии нейтрона для ОСЛН-материала, который является 50:50% смесью Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С и <sup>6</sup>Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>. [80].

# 3.5 Методика ИОСЛ

Импульсная ОСЛ-методика [10-12] дает эффективный метод радиационной дозиметрии с широким динамическим диапазоном, высокой чувствительностью и отличным отношением «сигнал-шум» (SNR). Важными соображениями здесь являются выбор длительности стимулирующих импульсов и скорости их следования (частоты). Выбирая их надлежащим образом для исследуемого материала, можно соптимизировать параметры измерений таким образом, чтобы достичь очень высокой эффективности детектирования люминесценции. Фундаментальное требование к высокой эффективности детектирования – чтобы время жизни люминесценции материала было больше, чем длительность стимулирующего импульса плюс «мертвое» время, необходимое ТФУ для возврата в состояние равновесия после импульса света.

Рисунок 21 схематично показывает организацию синхронного детектирования, в которой поток лазерных импульсов синхронизирован с задвижкой счетчика ТФУ таким образом, чтобы во время импульса, а также в течение коротких промежутков времени до и после импульса, сбор данных не осуществлялся. Сбор данных появляется только в предварительно определенный период между импульсами. ТФУ включена постоянно, а счетчик фотонов стробирован таким образом, чтобы считать импульсы только в пределах указанного периода. Нет необходимости ждать, пока ИОСЛ-сигнал от конкретного импульса полностью затухнет до прибытия нового импульса. Более того, поскольку длительность импульса (300 нс в данной примере) намного меньше, чем время жизни люминесценции, при выключении сбора данных на время каждого импульса теряется лишь незначительное количество света. При частоте 4000 Гц, полное мертвое время за период стимуляции 1 с составляет ~60 мс, а потеря люминесценции - только 6%. Конечный результат – очень высокая эффективность измерений с хорошим SNR и ослабленным требованием к оптической фильтрации стимулирующего света. На практике стараются максимизировать люминесценцию, излученную после импульса, в сравнении с люминесценцией, испускаемой во время импульса, посредством уменьшения длительности импульса и увеличения пиковой мощности лазера или светодиода. Однако, ТФУ по-прежнему следует защищать оптическими фильтрами от ослепления стимулирующим импульсом.



РИСУНОК 21. Схема временной диаграммы для синхронизации ИОСЛ-измерений с импульсами Nd:YAGлазера. Затененные области в нижней части диаграммы показывают периоды измерений люминесценции. В каждом из этих периодов (продолжительностью 235 мкс) люминесценция ослабляется с временем жизни 35 мс. Сумма всех импульсов, записанных во время этих периодов сбора данных, и формирует измеренный ИОСЛ-сигнал [12].



РИСУНОК 22. Кинетика ИОСЛ-сигнала в течение 1000 мс стимуляции импульсным лазером, за которой идет 35 мс ослабления люминесценции F-центра и зависящей от температуры фосфоресценции от мелких ловушек, иногда называемых «задержанной» ОСЛ (DOSL). Три кривые представляют материалы с различной концентрацией мелких ловушек [11].

Длинное время люминесценции 35 мс и концентрация мелких ловушек играют важную роль в придании формы ИОСЛ-сигналу, как показано на Рис. 22 для трех различных кристаллов Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С. Прежде всего, ИОСЛ-сигнал увеличивается с увеличением времени стимуляции. В какой-то момент достигается равновесие между скоростью возбуждения центров люминесценции и скоростью релаксационного ослабления таких центров. В конечном итоге сигнал уменьшается из-за истощения ловушек, но это уменьшение сильно зависит от концентрации мелких ловушек. ОСЛ-материал с более высокой концентрацией мелких ловушек демонстрирует более медленное ослабление во время стимуляции благодаря повторному захвату заряда и испускает фосфоресценцию в течение долгого времени после отключения оптической стимуляции при t=1000 мс. Еще одно следствие присутствия мелких ловушек которая представляет собой термостимулированный процесс [11].

#### 3.6 ОСЛ-метод формирования изображения

Одно из многих преимуществ ОСЛ-технологии состоит в возможности формирования изображения, которая уже используется в компьютерной радиографии [15]. В индивидуальной дозиметрии интерес представляют нехарактерные условия облучения, когда дозиметр случайно или умышленно (т.е. несанкционированно) подвергается облучению в то время, когда его не носит на себе человек. Примером такого случая может быть ситуация, когда кто-то кладет радиационный дозиметр вблизи источника излучения, чтобы подвергнуть облучению дозиметр, а не человека. Такие «статические» облучения дозиметра дадут четкое изображение фильтров, размещенных перед ОСЛ-пленкой. И их следует отличать от облучения в случаях, когда человек носит такой дозиметр на своей одежде в течение длительного времени. Другие потенциально ненормальные ситуации облучения включают в себя непреднамеренное экранирование дозиметра внешними предметами (монетами, скрепками и т.п.) из-за того, что дозиметр носят неправильно, например, в кармане, а не поверх одежды. Еще одни нехарактерные условия облучения включают облучение под углом, или загрязнение дозиметра радиоактивными загрязняющими веществами.

Метод различения между нормальным «динамическим» радиационным облучением и ненормальным, или «статическим», облучением дозиметра в фиксированном положении относительно источника излучения показан на Рис. 23 и подробно описан в [16]. Данная методика полагается на использование радиационного фильтра с периодической структурой отверстий, или другими слабо-поглощающими областями, так что Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С подвергается воздействию по схеме, повторяющей схему фильтрации. Дальнейшая подсветка Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С раскрывает картину люминесцентного излучения, соответствующую структуре поглощенной дозы. Во время статического облучения, структура поглощенного излучения является четкой и контрастной, в то время как при динамическом облучении структура поглощенного излучения размыта. Обработка изображения картины собранного излучения ИОСЛ с использованием дискретного преобразования Фурье дает пространственный частотный спектр скомпонованного изображения, из которого вычисляется коэффициент, показывающий вероятность статического облучения по сравнению с динамическим. Более того, полученный образ ИОСЛ может также показать случайное экранирование. Процедура компоновки изображений, алгоритмы обработки изображений, а также два различных метода определения коэффициента вероятности подробно описаны в [16].



**РИСУНОК 23.** ОСЛ-элемент формирования изображений и диаграмма, объясняющая различия между статическим и динамическим рентгеновским облучением, которое можно идентифицировать посредством обработки изображения в области пространственных частот, и выдать уведомление в случае высокого значения дозы и статического облучения.

# 3.7 ОСЛ-дозиметры и средства измерения

Первый коммерческий ОСЛ-дозиметр, продвигаемый под маркой as Luxel<sup>™</sup> и основанный на методике ИОСЛ и Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C, был разработан для целей дозиметрического контроля персонала и представлен компанией «Landauer» в 1998 году. Чувствительным элементом ОСЛ-дозиметра является порошок Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C, смешанный с органическим связующим веществом и напечатанный на прозрачной пластиковой подложке. В последней модификации, показанной на Рис. 24а, ОСЛ-датчик расположен между двумя частями двухстворчатого фильтрующего элемента, имеющего 5 участков детектирования с различной фильтрацией: открытое окно, пластик, медь-алюминий, алюминий и центральный элемент формирования изображений, сделанный из перфорированной медной пластины. Элемент формирования изображений позволяет поставщику услуг различить статическое и динамическое облучение с использованием запатентованного алгоритма обработки изображений [16].

Дозиметры InLight<sup>™</sup> используют тот же самый напечатанный ОСЛ-материал на основе Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C, как и Luxel<sup>™</sup>, но штампованный на 7-мм диски и смонтированный на салазках и корпусах с четырьмя различными фильтрами (Рис. 24b и 24d). В процессе сборки можно также добавить компонент формирования изображений с перфорированным медным фильтром и/или детектор нейтронов на основе CR-39. «Nano-Dot» – ОСЛ-детектор с маленьким форм-фактором, имеющий светонепроницаемый корпус и размер всего лишь

10×10×2 мм, разработан для целей медицинской дозиметрии, контроля качества (QA) радиационного оборудования и контроля за пациентами (Puc. 24c). Информацию с «Nano-Dot» можно считывать тем же считывателем microStar, что и дозиметр InLight<sup>тм</sup>, используя специальный адаптер.



c) «Nano-Dot» и адаптер для ОСЛ-считывателя microStar InLight;

РИСУНОК 24. Различные ОСЛ-дозиметры от компании «Landauer, Inc.»

Одно из основных опасений в медицинской диагностике с использованием рентгеновского излучения состоит в потенциальном получении пациентом слишком большой дозы. И снова можно использовать ОСЛтехнологию для предотвращения такой ситуации. Для контроля качества сканнера компьютерной томографии (КТ) используется ОСЛ-дозиметр в форме полоски (Рис. 25). Полосковый ОСЛ-дозиметр помещается в FDA-фантом для облучения внутри сканера КТ с предварительно заданными параметрами (Рис. 25). Этот полосковый ОСЛ-дозиметр измеряет профиль дозы с высоким пространственным разрешением в 0.1 мм и дает информацию о коллимировании, профиле индивидуального слоя и наложении слоев.



**РИСУНОК 25.** Контроль качества в компьютерной томографии с использованием полосковых ОСЛдетекторов компании «Landauer».

### 3.8 Аппаратура считывания ОСЛ-данных

Когда в 90-х годах создавалась технология ИОСЛ, приборы считывания были относительно сложными и дорогостоящими, в основном из-за высокой стоимости импульсных лазеров Nd:YAG с модуляцией добротности, но недавно появились суперяркие зеленые светодиоды с хорошими модулирующими свойствами, что позволило создать новое поколение аппаратуры. На Рис. 26 и 27 показаны два примера аппаратуры для ОСЛ. InLight<sup>тм</sup> microStar – это компактный прибор для ручного введения и считывания дозиметров InLight<sup>тм</sup> и «Nano-Dot» с использованием дополнительного адаптера. microStar используется в небольших лабораториях и больницах, тогда как автоматические считыватели InLight<sup>тм</sup> Auto200 и Auto500 (не показан) были разработаны для более широкомасштабного использования в дозиметрических лабораториях.



РИС 26. Аппаратура ОСЛ компании «Landauer»: а) ручной ОСЛ-считыватель microStar и b) считыватель InLight<sup>™</sup> Auto200 с возможностью загрузки 200 дозиметров.

Одним из первых успешных применений ОСЛ было в области ретроспективной и аварийной дозиметрии [5,43], и на сегодняшний день ТЛ/ОСЛ-считыватель Model DA-20, разработанный и производимый Национальной лабораторией «RISOE», Дания (Рис. 27) считается лучшим инструментом для ОСЛ-исследований в области датирования и ретроспективной дозиметрии [81,82]. Стандартная стимулирующая ОСЛ-головка содержит один или несколько кластеров светодиодов с различными длинами волн стимуляции. Трубка фотоэлектронного умножителя (ФЭУ) с низкими темновыми отсчетами обычно используется в качестве фотоприемника. Такая комбинация фильтров в каналах возбуждения и детектирования эмиссии (обычно это полосовые фильтры на пропускание) обеспечивает хорошее оптическое распознавание стимулирующего и излученного света. Возможность загрузки нескольких образцов в загрузочный магазин, наличие источника бета-излучения или миниатюрной рентгеновской трубки, нагревательного элемента и нескольких вариантов стимуляции для ОСЛ позволяют получать сложные профили облучения, считывания и (оптического) отжига. Другие модификации прибора от «RISOE» оснащены лазером и устройствами перемещения, что позволяет обеспечить точное позиционирование и стимуляцию отдельных зерен [5]. Кроме того, в разработке находится компактный ОСЛ-считыватель для геологического датирования объектов внеземного происхождения [81].



РИС. 27. ТЛ/ОСЛ-считыватель Model DA20 производства Национальной лаборатории «RISOE», Дания и схема ОСЛ-головки [81].

Еще одним важным применением ОСЛ-технологии является удаленная оптоволоконная дозиметрия с использованием миниатюрных чувствительных элементов из Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С, подключенных к оптоволокну и портативному ОСЛ-считывателю (Рис. 28). Волоконно-оптические датчики из Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> для удаленной дозиметрии в режиме реального времени должны обладать несколькими важными характеристиками. Помимо обычных требований к высокой чувствительности и линейности зависимости отклика от дозы, они должны обладать низкими концентрациями поверхностных и глубоких ловушек. Последние два требования особенно важны. Наличие поверхностных ловушек замедляет процесс считывания при периодической стимуляции, в то время как заряд, накапливающийся на глубоких ловушках трудно высветить (удалить). Пример измерений мощности дозы в реальном времени с использованием РЛ- и «равновесных» ОСЛ-сигналов от волоконно-оптических датчиков из Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С показан на Рис. 29. Более детальную информацию об этой новой технологии можно найти в другой части этого издания в докладе Клауса Андерсена [26].



Рис. 28. волоконно-оптические датчики из Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C (a), и портативный оптоволоконный ОСЛ-считыватель (b), разработанный в компании «Landauer» для медицинских целей.



РИС. 29. Измерения мощности дозы в реальном времени на 5 уровнях тока рентгеновской трубки с использованием оптоволоконного прибора, работающего в комбинации ИОСЛ- и РЛ-режимов. Мощность дозы пропорциональна как интенсивности РЛ-сигнала, так и равновесному уровню ОСЛ.

# 4. ДОЗИМЕТРИЧЕСКИЕ ОСЛ-СИСТЕМЫ НА ОСНОВЕ ОКСИДА БЕРИЛЛИЯ

До недавнего времени Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С и ОСЛ-аппаратура InLight<sup>TM</sup> от компании «Landauer» (США) были единственной широко используемой ОСЛ-технологией. Недавно в результате сотрудничества между исследовательским центром «Helmholtz-Zentrum» (бывший GSF) в Мюнхене и Техническим университетом Дрездена в Германии появились публикации, в которых описываются текущие разработки персональной дозиметрической системы на основе промышленных керамических детекторов из BeO и модульной системы с ОСЛ-считывателем. Материал детектора - Thermalox 995<sup>TM</sup> (Brush Ceramic Products, компания «Brush Wellman, Inc»), который используется в этой ОСЛ-системе, - это хорошо известная промышленная керамика, которая изучалась в 60-х и 70-х годах как потенциальный материал для ТЛ/ТСЭЭ-детектора [48-50]. В качестве альтернативного материала для дозиметров рассматривался BeO, который может конкурировать с LiF (TLD100) благодаря своей почти полной тканеэквивалентности (Z<sub>eff</sub>=7,14 против Zeff ~ 7,6 для ткани) и высокой чувствительности, сравнимой с чувствительностью LiF. В то время этот материал был отвергнут из-за паразитных возбуждений фонового сигнала, светочувствительности и опасений относительно токсичности BeO.

Возобновление интереса к BeO было вызвано исследованиями применения керамики BeO Termalox-995<sup>тм</sup> для ОСЛ, проведенными Булуром и Гексу в 1998 г. [51], в ходе которых они продемонстрировали, что спектр стимуляции ОСЛ-сигнала лежит в широком диапазоне от 420 до 550 нм с максимумом вблизи 435 нм. Как сообщалось, спектр излучения ТЛ-сигнала от BeO находился в УФ-диапазоне с основным пиком вблизи 335 нм [3], а ОСЛ-излучение регистрировалось в широком диапазоне вокруг 325 нм [52]. В ОСЛсчитывателе, разработанном в Техническом университете Дрездена (Рис. 30), используются синие светодиоды (470 нм) для стимуляции и ФЭУ фирмы «Hamamatsu» для детектирования люминесценции (Рис. 31). Излучение от BeO демонстрирует температурное тушение при относительно низких температурах с энергией активации 0,48-0,52 эВ [14], что может дать существенную зависимость ОСЛ-показаний от температуры. Благоприятные дозиметрические характеристики BeO включают высокую чувствительность к ионизирующему излучению и линейную зависимость отклика от дозы в диапазоне от ~1 мкГр до ~5 Гр (Рис. 32), а также хорошую энергетическую зависимость для фотонов излучения (Рис. 33) [52, 53].

Основную обеспокоенность при крупномасштабном применении BeO вызывает тот факт, что Termalox-995<sup>тм</sup> - это промышленный керамический материал, и производитель не может контролировать наличие примесей. В результате воспроизводимость свойств чипа относительно слабая. Скорее всего, потребуется калибровка каждого чипа и присвоение индивидуального коэффициента чувствительности. У BeO, также как и у Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С, имеются поверхностные и глубокие ловушки, которые приводят к фосфоресценции сразу после облучения, а это может привести к проблемам при медицинском применении даже несмотря на тканеэквивалентность BeO. Токсичность BeO также вызывает озабоченность при медицинском применении на живых организмах.



РИС. 30. Схема дозиметрической системы с ВеО [83]



**Рис. 32.** Зависимость дозы в дозиметрах с BeO с низким пределом обнаружения 1 мкГр [53].



РИС. 31. Пример распределения измеренной дозы от коллимированного радиоактивного источника [83].



**Рис. 33**. Энергетический отклик детекторов с BeO почти эквивалентен ткани, но все же требует 20% -й поправки при низких энергиях фотона [53].

# 5. ФЛУОРЕСЦЕНТНЫЕ ТРЕКОВЫЕ ДЕТЕКТОРЫ ЯДЕРНЫХ ЧАСТИЦ

Дозиметрическое сообщество давно ожидало появления дозиметра, который бы преодолел все ограничения, присущие используемой на сегодняшний день технологии с пассивными детекторами. Такой пассивный интегрирующий детектор должен быть чувствителен к заряженным частицам в широком диапазоне ЛПЭ, должен требовать незначительную химическую обработку после облучения, или вообще не требовать таковой, должен иметь возможность проведения неразрушающих (т.е. многочисленных) считываний с использованием полностью автоматизированного оборудования, и быть годным для стирания и повторного использования. Хотя ТЛ- и ОСЛ-детекторы можно использовать повторно, и они обладают высокой чувствительностью к низкоионизирующему излучению, они могут измерять только высокоионизирующее излучение тяжелых заряженных частиц (ТЗЧ) со сниженной эффективностью [78], и обладают низкой или нулевой чувствительностью к быстрым нейтронам [27,28]. Кроме того, ТЛД можно считать только один раз. Пластиковые трековые детекторы ядерных частиц (PNTD) CR-39 [84,85] обладают чувствительностью к излучению с ЛПЭ в воде (ЛПЭ $_{\infty}$ H<sub>2</sub>O), превышающему 5 кэВ/мкм, а также к нейтронам (за счет треков протонов отдачи, вызванных нейтронами) [86], но им не хватает чувствительности к низкоионизирующему излучению. PNTD с CR-39 могут использоваться только один раз, и перед считыванием должны подвергаться химическому травлению.

Новые флуоресцентные трековые детекторы ядерных частиц из Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С, недавно разработанные в компании «Landauer, Inc.», показали лучшую чувствительность и функциональность по сравнению с существующими трековыми детекторами ядерных частиц. В основе этих FNTD лежат единичные кристаллы оксида алюминия, легированного углеродом и магнием, и они имеют комплексные дефекты с вакансиями кислорода (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg), описанные в Разделе 3. Основными преимуществами FNTD с Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg перед традиционно обрабатываемым пластиковым трековым детектором ядерных частиц CR-39 являются более высокое пространственное разрешение, более широкий диапазон чувствительности к ЛПЭ, отсутствие необходимости химической обработки детектора, и возможность отжига и повторного использования детектора. FNTD имеют нижний порог ЛПЭ в 0,5 кэВ/мкм, не достигают насыщения при ЛПЭ в воде 1800 кэВ/мкм, и способны к облучению до плотностей потока, превышающих 10<sup>6</sup> см<sup>-2</sup>, без насыщения (наложения треков). Расширение диапазона доз и решение для разделения доз от нейтронов и гамма были показаны с помощью конструкции дозиметра с тремя преобразователями и новой методики обработки изображений в пространственно-частотной области.

# 5.1 Физика люминесценции в Al2O3:C,Mg

Физика FNTD отличается от ОСЛ, ее можно описать как радио-фотолюминесценцию (РФЛ), когда излучение путем радиохромной трансформации одного типа центров окраски создает новые стабильные центры люминесценции, которые можно опрашивать неразрушающим образом с помощью света за счет процесса возбуждения-излучения без фотоионизации. По сравнению с ОСЛ, где свободные электроны приводят к люминесценции в результате рекомбинации на центрах окраски (рекомбинационная люминесценция), в FNTD используется внутрицентровая фотолюминесценция.

Кристаллы Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg имеют зеленую окраску благодаря полосе поглощения 435 нм, вызванной совокупностью центров окраски  $F_2^{2+}(2Mg)$ , состоящими из двух вакансий кислорода, заряд которых компенсируются двумя ионами магния (Рис. 8) [38,39]. Электронные процессы в кристаллах Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg проиллюстрированы на Рис. 34. Проходя через кристалл, ионизирующее излучение создает большое количество электронно-дырочных пар. Центры  $F_2^{2+}(2Mg)$  эффективно захватывают свободные электроны и претерпевают радиохромную трансформацию в трехэлектронное состояние, образующее центры  $F_2^{+}(2Mg)$ . Такой центр имеет зону возбуждения с центром на 620 нм и излучением 750 нм. Центры окраски  $F_2^{+}(2Mg)$ , возникающие в результате облучения в новом материале, имеют зону возбуждения в 620 нм, и производят флуоресценцию 750 нм с высоким квантовым выходом и короткой, 75±5 нс, продолжительностью флуоресценции, что можно использовать для быстрого сканирования.



РИС. 34. Плоская зонная диаграмма облучения и считывания Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg [90].



**РИС. 35.** Корпуса FNTD и полиэтиленового преобразователя с чипами <sup>6</sup>LiF ПТФЭ. FNTD были вырезаны в форме прямоугольных пластин 6×4×0,5 мм<sup>3</sup>, длинная сторона располагалась вдоль оптической *с*-оси кристалла. Одна сторона FNTD была отполирована [33].



**РИС. 36.** Пример флуоресцентного изображения с треками протонов отдачи. FNTD был облучен нейтронами из <sup>241</sup>AmBe-источника, находящегося за полиэтиленовым преобразователем [36].

# 5.2 Конфигурация дозиметра с FNTD для разделения нейтронов и гамма-излучения

Трековые детекторы ядерных частиц, включая FNTD, традиционно измеряли дозу нейтронного облучения сопоставляя плотность треков продуктов ядерных реакций с плотностью потока падающих нейтронов. Для обнаружения тепловых нейтронов широко применялись преобразователи, содержащие изотопы <sup>6</sup>Li или <sup>10</sup>B с большим сечением захвата [86]. Для обнаружения быстрых нейтронов водород, имеющий такую же массу как нейтрон, обладает наибольшим сечением взаимодействия [86]. В целях практической нейтронной дозиметрии кристалл FNTD покрывается преобразователями из <sup>6</sup>LiF и/или полиэтилена (ПЭ) (Рис. 35). Продукты реакции – альфа-частицы, ионы трития или протоны отдачи, - производят ионизацию  $Al_2O_3$ :С,Mg в пределах объема трека, и отображаются во флуоресцентном контрасте с помощью системы лазерного сканирования как яркие пятна на темном фоне (Рис. 36). При низких дозах в отсутствии высоких доз фотонов распознавание и подсчет треков дают наилучший результат и обеспечивают высокую чувствительность измерений дозы нейтронного облучения [29, 32, 35].

В отличие от PNTD, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С,Мg также чувствителен к излучению с низкой линейной передачей энергии (ЛПЭ), включая вторичные электроны, образуемые в результате взаимодействия фотонов с кристаллом. Нейтронное излучение обычно сопровождается гамма-излучением. Если доза гамма-излучения превышает несколько сГр, флуоресценция, вызванная наложением треков вторичных дельта электронов, может создавать помехи сигналу, вызванному протонами отдачи, усложняя обнаружение и подсчет треков, вызванных нейтронами [33]. Далее в этой статье будет описан новый метод обработки изображений в качестве методики определения правильного значения дозы в смешанных гамма-нейтронных полях.



РИС. 37. Схема комбинаций FNTD-преобразователь, иллюстрирующая энергетический отклик и разделение гамма и нейтронов

Обычной практикой в нейтронной дозиметрии является использование двух или трех компонентов для определения дозы нейтронного облучения в смешанных полях. Например, один компонент обладает чувствительностью к нейтронам и гамма-излучению, а другой – только к гамма-излучению. Таким образом, доза нейтронного облучения определяется следующим выражением:

$$D_n = \frac{Q(n+\gamma) - A(\gamma)D_{\gamma}}{B(n)},$$
(5)

где  $Q(n+\gamma)$  – это полный отклик детектора,  $A(\gamma)$  – это чувствительность к гамма-излучению,  $D_{\gamma}$  - это доза гамма-облучения, а B(n) – это чувствительность к нейтронам [86].

Для дозиметрии в смешанных полях FNTD помещаются в держатели из полиэтилена (ПЭ), специально разработанные так, чтобы часть полированной стороны FNTD была покрыта ПЭ, а другая половина – политетрафторэтиленом (ПТФЭ или Тефлон™), не содержащим водород (Рис. 35 и 37). Изображения, полученные за ПТФЭ дают сигнал от дозы фотонного облучения, тогда как изображения, полученные за ПЭ, дают информацию и о нейтронах, и о фотонах. Целью преобразователя ПТФЭ является защита поверхности FNTD от протонов отдачи и обеспечение электронного равновесия на поверхности детектора, как и в случае с ПЭ при гамма-облучении. Для дальнейшего разделения тепловых/замедленных и быстрых нейтронов используется еще один преобразователь, изготовленный из чипов LiF. При низких энергиях нейтронов плотность треков за LiF будет выше, чем за ПЭ преобразователем, тогда как для нейтронов с высокой энергией наблюдается обратная тенденция, что будет объяснено дальше в разделе 5.6.2 «Зависимость от энергии нейтронов»

#### 5.3 Система считывания

Неразрушающее считывание детектора осуществляется с использованием метода флуоресцентной конфокальной микроскопии с лазерным сканированием. Сканирование трехмерного пространственного распределения интенсивности флуоресценции вдоль трека тяжелой заряженной частицы (ТЗЧ) позволяет восстановить траектории частиц через кристалл, а ЛПЭ может быть определена как функция расстояния вдоль траектории на основании интенсивности флуоресценции. Изображения с FNTD получаются с помощью системы флуоресцентной конфокальной микроскопии с лазерным сканированием, подробно описанной в [29,36].

На Рис. 38 и 39 показаны оптические схемы двух конфокальных сканирующих систем собственной разработки, созданных для получения флуоресцентных изображений от детекторов с оптическим разрешением на пределе дифракции света. В системе на Рис. 39 используется волоконно-оптический диодный лазер с длиной волны  $\lambda = 635$  нм и оптическим объективом с высокой числовой апертурой (ЧА) 40Х, 0.95NA. Для обеспечения высокой скорости сканирования в плоскости ХҮ используются двухосевые зеркальца гальванометра. Осевое сканирование (Z) и определение глубины фокальной точки в кристалле обеспечивается за счет пьезо-актюатора перемещения. Флуоресценция, вызванная лазерным излучением, собирается тем же объективом, передается через дихроичное зеркало, отображается на конфокальной

апертуре (диафрагме), и детектируется кремниевым лавинным фотодиодом (ЛФД), установленным за диафрагмой. Дополнительный оптический фильтр, установленный перед ЛФД, отклоняет остаточное лазерное излучение. Конфокальная апертура является пространственным фильтром, который блокирует все свечение, возникающее вне фокального пятна объектива, и обеспечивает оптическое разрешение на пределе дифракции света. Изображения формируются как массив напряжений, полученных платой сбора данных от фотоприемника.





РИС. 38. Схема оригинальной конфокальной системы получения изображений, использованной для получения первых результатов (изображения альфа-частиц и предварительные зависимости ЛПЭ) с FNTD [29].

считывателя с быстрыми сканирующими гальванометрами и устройствами перемещения для считывания нескольких детекторов [36].

В процессе считывания FNTD сначала сканируются лазерным лучом, перпендикулярным к поверхности детектора, чтобы определить положение поверхности с точностью до 0,1 мкм. После того, как осевое положение поверхности найдено, детекторы сканируются в плоскости, параллельной их поверхности, на глубине в 3,5 мкм ниже поверхности кристалла. Отдельные изображения имеют размеры 100×100 мкм<sup>2</sup>, а число полученных изображений зависит от измеренной дозы, и адаптивно варьируется между 25 и 100 для каждого участка преобразователя.

#### 5.4 Режим считывания треков при определении дозы

Определение дозы нейтронного облучения в режиме считывания осуществляется относительно просто. Система считывания собирает заранее определенное количество изображений, система обработки изображений распознает и подсчитывает флуоресцентные треки и отбрасывает любые артефакты, связанные с дефектами кристалла и загрязнением поверхности. Доза нейтронного облучения пропорциональна плотности треков на единицу площади, а калибровочный коэффициент в количестве треков/(мм<sup>2</sup>мЗв) определяется в процессе калибровки дозиметрической системы с использованием стандартных нейтронных полей. Было показано, что плотность треков линейно зависит от дозы (Рис. 43). Необходимо подчеркнуть, что калибровочный коэффициент сильно зависит от энергии нейтронов, что будет обсуждаться в Разделе 5.6.2.

#### 5.5 Режим анализа пространственных частот

Анализ пространственных частот дает новый подход к определению дозы радиации путем оценки модуляции интенсивности флуоресценции в пределах изображения, полученного от облученного детектора. Модуляция интенсивности флуоресценции вызвана неравномерностью энергетического воздействия и ионизации, произведенных заряженными частицами (протонами отдачи или вторичными электронами) при кулоновском взаимодействии с FNTD. Количественная оценка модуляции интенсивности флуоресценции

осуществляется с использованием анализа пространственных частот изображения (Рис. 40). Изображение преобразуется в пространственно-частотную область с помощью дискретного преобразования Фурье (ДПФ):

$$F(k,l) = \frac{1}{N^2} \sum_{m=0}^{N-1} \sum_{n=0}^{N-1} f(m,n) e^{-\frac{2\pi i}{N}(km+ln)}$$
(6)

где f(m,n) – это интенсивность исходного изображения в пространственной области в точках m и n; k и l – это пространственные частоты, а F(0,0) представляет собой смещение постоянной составляющей изображения. Двухмерное ДПФ является разделимым, так что изображению необходимо пройти два одномерных преобразования Фурье вместо одного двойного. Число расчётов, необходимых для полного преобразования изображения, определяется как  $N^2$ . Использование быстрого преобразования Фурье (БПФ) позволяет уменьшить число расчётов до  $N \log_2 N$ , при этом результат остается прежним.

Спектральная плотность мощности изображения рассчитывается путем возведения в квадрат величины преобразования Фурье, т.е.  $|F(k,l)|^2$ . Интегрирование спектральной плотности мощности в заранее определенном частотном диапазоне дает параметр, называемый интеграл спектральной мощности (ИСМ) или мощность изображения, определяемая как

$$P = \int_{k_0}^{k} \int_{l_0}^{l} \left| F(k,l) \right|^2 dk dl$$
<sup>(7)</sup>

где  $k_0$  и  $l_0$  – исходные пространственные частоты, представляющие интерес. Установлено, что ИСМ пропорционален дозе для разных типов излучения (Рис. 43) [33].



РИС. 40. Флуоресцентные изображения обрабатываются в пространственно-частотной области, и рассчитывается интеграл спектральной мощности, пропорциональный поглощенной дозе [90].

Флуоресцентные изображения от кристалла Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С,Mg после получения средних и высоких доз быстрых нейтронов показывают значительной число перекрывающихся треков (Рис. 41), что в пространственно-частотной области должно давать особый характерный спектр мощности. То же самое справедливо и для средних и высоких доз гамма облучения (Рис. 42). Хотя гамма-фотоны могут падать на кристалл одинаковым образом, сила и локализация энергетического воздействия будут иметь микроскопические и статистические отклонения, как описано в работе по микродозиметрическому подходу [87]. Треки отдельных вторичных (или дельта) электронов, как правило, невидимы из-за их низкой ионизационной плотности. С увеличением дозы гамма-облучения они начинают перекрываться и формировать яркие компоненты, которые создают видимость «комковатой» текстуры на изображении, и приводят к трудностям в идентификации и подсчете треков протонов отдачи.



РИС. 41. Изображение от FNTD после 1 Зв быстрых нейтронов от открытого источника <sup>241</sup>AmBe (преобразователь из ПВД) [90].



**РИС. 42.** Изображение от FNTD после 2 Гр гамма (662 кэВ) от источника <sup>137</sup>Cs (преобразователь из Тефлона<sup>ТМ</sup>) [90].

# 5.6 Дозиметрические свойства FNTD

### 5.6.1 Зависимости отклика от дозы для нейтронов и фотонов

Рис. 43 иллюстрирует зависимости отклика от дозы для FNTD, облученных нейтронами и гамма за ПЭпреобразователем, с использованием двух режимов обработки изображений: режима считывания треков и режима измерения и расчета дозы с использованием спектрального интеграла изображения. Видно, что ИСМ линеен в большом диапазоне доз, и позволяет увеличить дозу насыщения с 300 мЗв при использовании режима считывания треков до более чем 12 Зв при использовании режима измерения и расчета дозы с использованием спектрального интеграла изображения [36].



РИС. 43. Зависимости отклика от дозы для FNTD, находящихся за ПЭ-преобразователем, для быстрых нейтронов из открытого AmBe источника с использованием режима считывания треков (треугольники) и режима измерения и расчета дозы с использованием спектрального интеграла изображения (квадраты). Зависимость сигнала от дозы при гаммаоблучении при использовании режима измерения и расчета дозы с использованием спектрального интеграла изображения (круги) также линейна [33].

Доза насыщения для нейтронов не была достигнута из-за низкой активности имеющегося источника AmBe. Чувствительность метода измерения и расчета дозы с использованием спектрального интеграла изображения для FNTD (с точки зрения эквивалента дозы) к гамма-излучению (см. *отклик на гамма-излучение* ниже) в 5,6 раз больше чувствительности к нейтронам от открытого источника AmBe.

FNTD, облученные гамма- и рентгеновскими лучами (40 kVp), находящиеся за преобразователями из ПЭ и ПТФЭ, показали линейность зависимости отклика от дозы в диапазоне 5 порядков величины. Зависимость метода измерения и расчета дозы с использованием спектрального интеграла изображения для FNTD, облученных гамма, находящихся за ПЭ и ПТФЭ, почти коллинеарна. Разница в наклоне между FNTD, закрытых ПЭ и ПТФЭ, составляет 2,5%, что в основном объясняется разницей в их массовых коэффициентах поглощения.

#### 5.6.2 Зависимость отклика от энергии для моноэнергетических нейтронов и нейтронов широкого диапазона энергий

Отклик почти всех детекторов нейтронов зависит от энергии нейтронов. FNTD не является исключением. Чтобы получить калибровочные коэффициенты для моноэнергетических нейтронов и нейтронов широкого спектра энергии, работы по облучению были проведены в Национальной физической лаборатории (НФЛ) в Великобритании, в Северо-западной тихоокеанской лаборатории (PNNL) в США и на облучательной установке компании «Landauer» в штате Иллинойс, США. Использовались два преобразователя (ПЭ и <sup>6</sup>LiF) с различными зависимостями отклика от энергии в сечениях взаимодействия, и были получены их калибровочные кривые, приведенные на Рис. 44.



Средняя энергия нейтронов, кэВ

РИС. 44. Плотности треков за ПВД- и LiF-преобразователями. Облучение проведено в НФЛ (Великобритания) и PNNL (США) [35].





**РИС. 45.** Отношение плотности треков для моноэнергетических нейтронов и нейтронов широкого спектра энергии [35]

**РИС. 46.** Плотности треков, нормированные к плотности треков на поверхности FNTD, закрытых полиэтиленом, как функция глубины сканирования для моноэнергетических

нейтронов с высокой энергией. Облучение было проведено в JRC-IRMM (Бельгия) [35].

Зависимость отклика от энергии для LiF-преобразователей хорошо соответствует ее сечению реакции (n, $\alpha$ ), а плотность треков уменьшается с увеличением энергии нейтронов, тогда как плотность треков за ПВД-преобразователями увеличивается с увеличением энергии нейтронов. Для нейтронов с более высокой энергией появляется больше протонов отдачи, которые оставляют обнаруживаемые треки в FNTD, ввиду увеличения диапазона протонов отдачи и вероятности их выхода из толстого полиэтиленового преобразователя. Не ожидается, что плотности треков, соответствующих нейтронным источникам широкого спектра энергии ( $^{241}$ AmBe - открытому,  $^{252}$ Cf – открытому и с замедлителем), будут обязательно следовать той же зависимости отклика от энергии как для моноэнергетических нейтронов, т.к. в их спектрах присутствуют нейтроны как с низкой, так и с высокой энергией. Отношение плотностей треков за LiF- и ПЭ-преобразователями, нанесенное на график как функция энергии нейтронов (Рис. 45), - это гладкая функция энергии, и оно не зависит от полученной дозы. Поэтому оно может служить хорошим параметром для определения медианной энергии падающих нейтронов для источников как монохроматических нейтронов, так и нейтронов для источников как монохроматических нейтронов, так и нейтронов для источников как монохроматических нейтронов, так и нейтронов соторов для источников как монохроматических нейтронов, так и нейтронов соторов для источников как монохроматических нейтронов, так и нейтронов соторов для источников как монохроматических нейтронов, так и нейтронов соторов для источников как монохроматических нейтронов, так и нейтронов как монохроматических нейтронов, так и нейтронов инрокого спектра энергии.

Еще один интересный подход к оценке энергии нейтронов с использованием FNTD-технологии был продемонстрирован путем использования трехмерных возможностей конфокального детектирования. Детекторы, закрытые ПЭ-преобразователями, подверглись в Объединенном исследовательском центре – Институте стандартных образцов и измерений (JRC-IRMM) в Бельгии облучению моноэнергетическими нейтронами в диапазоне от 500 кэВ до 19,5 МэВ, и затем были получены изображения на различных глубинах для получения профиля распределения плотности треков или интеграла спектральной мощности по глубине (Рис. 46). Профиль распределения сигнала, вызванного протонами отдачи, по глубине сильно зависит от энергии нейтронов, и его можно использовать для оценки энергии нейтронов. Подробности данного исследования можно найти в [35].

#### 5.6.3 Зависимость от ЛПЭ

Было показано, что FNTD может использоваться как спектроскопический инструмент для определения тяжелых заряженных частиц. Зависимость амплитуд флуоресцентных треков от ЛПЭ и Z/β является гладкой и легко-калибруемой [37]. На Рис. 47 изображены гистограммы распределения амплитуды флуоресценции для семи ионов с различными атомными числами Z, энергиями и ЛПЭ. Эти гистограммы ясно демонстрируют способность FNTD различать треки от падающих частиц с разными значениями ЛПЭ<sub>∞H20</sub>. Полную ширину на половине высоты (ПШПВ) пиков можно считать спектральным разрешением этой технологии. Амплитуда флуоресценции еще не достигла насыщения даже при больших значениях ЛПЭ. Проведенные ранее эксперименты подтвердили, что FNTD способны обнаруживать протоны с энергией 250 МэВ с ЛПЭ<sub>∞H2O</sub> 0,4 кэВ/мкм [29]. Зависимость амплитуды флуоресценции для всех пучков тяжелых ионов, использованных в данном исследовании, как открытых, так и расположенных за клиновидными поглотителями, показана на Рис. 48. Зависимость от ЛПЭ является нелинейной, и продолжающееся увеличение амплитуды флуоресценции показывает, что детектор не достигает насыщения даже при ЛП $Э_{\infty H2O}$ = 8767 кэВ/мкм. Брэгговские пики были получены для восьми разных типов ионов с использованием металлических клиновидных поглотителей [37]. Спектроскопические возможности FNTD-технологии могут оказаться особенно важными в радиобиологии, радиотерапии, пространственной и нейтронной дозиметрии и экспериментах по диагностике ядерных реакций.





**РИС. 47.** Распределение интенсивности флуоресценции для семи ионов с высокой энергией, падающих на открытые FNTD. Облучение было произведено на установке HIMAC в NIRS, Япония [37].

**РИС. 48.** Зависимость интенсивности флуоресценции от  $ЛПЭ_{\infty}$  в оксиде алюминия (нижняя ось) и воде (верхняя ось). Фотоны с высокой энергией добавлены для полноты [37].

# 5.7 Применение флуоресцентных кристаллов Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg для построения изображений с высоким разрешением в радиационной терапии на микропучках (MRT)

Радиационная терапия на микропучках (MRT) – это экспериментальный метод радиотерапии, который показал впечатляющие предварительные результаты. МRT может использоваться для лечения опухолей головного мозга у младенцев, когда другие виды радиотерапии оказываются слишком токсичными для формирования нормального головного мозга. МRT использует чрезвычайно высокие дозы рентгеновского излучения, но дает необычайно высокую устойчивость к радионейротоксичности. За счет использования высоко-коллимированных квази-парраллельных массивов рентгеновских микропучков, полученных из синхротронных источников 3-го поколения, можно достичь малой расходимости пучка и большого градиента дозы с более четкой полутенью, чем при традиционной радиотерапии [88]. Для этого нового применения FNTD представляются очень перспективными (Рис. 49).



РИС. 49. Флуоресцентное изображение и его сечение после облучения кристалла Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg синхротронным микропучком и его считывания с использованием флуоресцентной системы получения изображений на основе конфокального сканирующего лазера. Детектор облучался до 10 Гр (пиковая доза) с межцентровым расстоянием в 400 мкм и 50 мкм ПШПВ [89].

FNTD были оптимизированы для получения изображений в диапазоне доз фотонов в 4 порядка – от 5 мГр до 50 Гр при пространственном разрешении в 0,6 микрон. Высокое пространственное разрешение и широких динамический диапазон дозовых измерений делают FNTD-технологию очень привлекательной для применения в области обеспечения качества MRT, когда большое отношение доз в пике (максимуме) и минимуме профиля доз (PVDR) должно быть измерено очень точно.

В Европейском комплексе синхротронного излучения (ESRF) получают высоко-коллимированные рентгеновские лучи в диапазоне 50-350 кэВ с медианной энергией 107 кэВ. Ряд FNTD был облучен с различными дозами и расстоянием между щелями-коллиматорами. PVDR измерялись для пучков с ПШПВ 50 мкм с межцентровым расстоянием от 50 до 400 мкм при различных дозах от 3 до 100 Гр, и на глубине в фантоме из поли-метил-метакрилата в 1, 11, 21 и 31 мм. Были продемонстрированы широкий динамический диапазон измеренных доз и двухмерное изображение полей микропучков высокого разрешения [89].

### 6. ВЫВОДЫ И ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Метод ОСЛ является успешным инструментом в персональной радиационной дозиметрии, геологическом и археологическом датировании и в радиационной диагностической визуализации. Недавно был достигнут значительный прогресс в теоретическом изучении ОСЛ, которое позволяет объяснить поведение чувствительных к облучению материалов с несколькими типами дозиметрических ловушек, центров рекомбинации и конкурирующих поверхностных и глубоких ловушек. Прогресс в разработке материалов, детекторов и аппаратуры открыл новые возможности и перспективы применения ОСЛ в медицине.

Мы детально описали физику и дозиметрические качества Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С. Высокая чувствительности, широкий динамический диапазон дозовых измерений, крайне низкий предел обнаружения (НПД) 0,4 мкГр, пренебрежимо малый тепловой фединг и хорошая устойчивость Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:С к внешним воздействиям делают его наиболее популярным ОСЛ-детектором для различных применений, включая мониторинг труда и различные аспекты медицинской дозиметрии.

Следующий технологический прорыв был сделан с флуоресцентными трековыми детекторами ядерных частиц, которые обладают некоторыми важными преимуществами при измерении быстрых нейтронов и тяжелых заряженных частиц с высокой энергией, которые стали новейшим инструментом в радиационной терапии. Новые кристаллы оксида алюминия, легированного Mg, и новый тип аппаратуры визуализации для FNTD-технологии обсуждались применительно к их использованию в смешанных полях нейтрон-гамма, медицинской дозиметрии и радиобиологических исследованиях. FNTD – это пассивный детектор интегрирующего типа, который не требует наличия проводов, электроники или батарей во время облучения. Этот детектор невосприимчив к электромагнитным помехам, и может измерять дозы при очень высоких мощностях дозы (он был успешно протестирован при 10<sup>8</sup> Гр/с). FNTD-детекторы изготавливаются из сапфира, и обладают очень хорошей температурной стабильностью и устойчивостью к внешним воздействиям, не имеют светочувствительности, теплового фединга или накопления сигнала. Пластины для записи изображений FNTD можно повторно использовать после термического отжига или оптического высвечивания. Процесс считывания FNTD является полностью оптическим и неразрушающим без химического травления или иной подготовки детектора. Было разработано и внедрено быстродействующее программное обеспечение для автоматического сканирования, обработки изображений и подсчета треков. Разделение доз от быстрых и замедленных нейтронов, а также от нейтронов и фотонов было достигнуто за счет использования трех разных преобразователей и новейшего метода обработки изображений.

FNTD-технология позволяет проводить быструю и недорогую оценку средних энергий нейтронов на установках за счет использования профиля распределения по глубине или отношения плотности треков за двумя преобразователями. Эффективность обнаружения нейтронов FNTD сравнима с CR-39. Кроме того, FNTD чувствительны к нейтронам с высокой энергией (20-100 МэВ), тогда как детекторы CR-39 теряют свой отклик из-за низкой чувствительности к протонам отдачи с высокой энергией с ЛПЭ менее чем 5 кэВ/мкм. Доза насыщения для FNTD более чем в 1000 раз выше, чем для PNTD CR-39. В настоящее время разрабатывается компактный настольный FNTD-прибор для автоматической обработки детектора.

# БЛАГОДАРНОСТИ

Автор выражает благодарность всем своим коллегам в компании Landauer и в Университете штата Оклахома, включая преподавателей и студентов, которые внесли огромный вклад в развитие всех аспектов ОСЛ- и FNTD-технологий, начиная от выращивания кристаллов и спектроскопических исследований, и заканчивая проектированием считывающих приборов и дозиметров. Я также хочу поблагодарить сотрудников других организаций (RISOE (Дания), NIRS (Япония), ESRF (Франция), RARAF-Университет Колумбии и многих других) за их вклад и полезные дискуссии.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. S.W.S. McKeever, Thermoluminescence of solids, Cambridge: Cambridge University Press, 1985.
- 2. Bräunlich, P. Introduction and basic principles. In: Thermally stimulated relaxation in solids. (Ed.: Bräunlich, P.) Berlin Springer Verlag, 1979.
- 3. S.W.S. McKeever, M. Moscovitch, and P.D. Townsend, *Thermoluminescence dosimetry materials: Properties and uses*. Ashford: Nucl. Tech. Pub., 1995.
- 4. R. Chen, S.W.S. McKeever, Theory of thermoluminscence and related phenomena, Singapore: World Scientific Pub., 1997.
- 5. L. Bøtter-Jensen, A.G. Wintle, and S.W.S. McKeever, *Optically stimulated luminescence dosimetry*. Amsterdam: Elsevier, 2003.
- 6. J. Gasiot, P. Bräunlich1, and J.P. Fillard, *Laser heating in thermoluminescence dosimetry*, J. Appl. Phys. **53**, 5200-5209 (1982).
- M.S. Akselrod, V.S. Kortov, D.J. Kravetsky, V. I. Gotlib, *Highly sensitive thermoluminescent anion-defective α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C single crystal detectors*, Radiat. Prot. Dosim. **32**, 15-20 (1990).
- 8. M.S. Akselrod and E.A. Gorelova, *Deep traps in highly sensitive α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C TL crystals*, Nucl. Tracks Radiat. Meas. **21**, 143-146 (1993).
- 9. M.S. Akselrod and V.S. Kortov, *Thermoluminescent and exoemission properties of new high sensitivity TLD α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C Crystals*, Radiat. Prot. Dosim. **33**(1-4), 123-126 (1990).
- S.W.S. McKeever, M.S. Akselrod and B.G. Markey, Pulsed optically stimulated luminescence dosimetry using α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C, Radiat. Prot. Dosim. 65, 267-272 (1996).
- 11. M.S. Akselrod, A.C. Lucas, J.C. Pulf, and S.W.S. McKeever, *Optically stimulated luminescence of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*, Radiat. Meas. **29**, 391-398. (1998).
- 12. M.S. Akselrod, and S.W.S. McKeever, A radiation dosimetry method using pulsed optically stimulated luminescence, Radiat. Prot. Dosim. **81**, 167-176 (1999).
- 13. M.S. Akselrod, N. Agersnap-Larsen, V. Whitley and S.W.S. McKeever, *Thermal quenching of F-centre luminescence in* Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C, J. Appl. Phys. **84**, 3364-3373 (1998).
- 14. E. Bulur and A. Yeltik, *Optically stimulated luminescence from BeO ceramics: An LM-OSL study*, Radiat. Meas. **45**, 29–34 (2010).
- 15. M. Sonada, M. Takano, J. Miyahara, and H. Kato, *Computed radiography utilizing scanning laser stimulated luminescence*. Radiography **148**, 833-837 (1983).
- M.S. Akselrod, N. Agersnap Larsen, and S.W.S. McKeever, A procedure for the distinction between static and dynamic radiation exposures of personal radiation badges using pulsed optically stimulated luminescence, Radiat. Meas., 32, 215-225 (2000).
- 17. R.E. Creager and P.K. Soltani, *Fiber optic dosimeter using electron trapping materials employing technique for eliminating background fluorescence*, US Patent #5,091,653 (1992).
- J.C. Polf, S.W.S. McKeever, M.S. Akselrod, and S. Holmstrom, A real-time, fiber optic dosimetry system using Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fibers. Radiat. Prot. Dosim. 100, 301-304 (2002).
- 19. J.C. Polf, , E.G. Yukihara, , M.S. Akselrod, , and S.W.S. McKeever, *Real-time luminescence from Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fiber dosimeters*, Radiat. Meas. **38**, 227-240 (2004).
- M.C. Aznar, C.E. Andersen, L. Bøtter-Jensen, S.A.J. Bäck, S. Mattsson, F. Kjær-Kristoffersen, and J. Medin, *Real-time optical fiber luminescence dosimetry for radiotherapy: physical characteristics and applications in photon beams*, Phys. Med. Biol. 49, 1655–1669 (2004).
- M.C. Aznar, J.C. Polf, M.S. Akselrod, C.E. Andersen, S.A.J. Back, L. Bøtter-Jensen, S. Mattson, S.W.S. McKeever, and J. Medin, *Real-time optical fiber dosimetry in radiotherapy*. Presented at 44<sup>th</sup> AAPM, Montreal, Canada, In: Med. Phys. 29, 1371 (2002).
- 22. M.S. Akselrod, S.W.S. McKeever, and L. Botter-Jensen, *Optically stimulated luminescence and its use in medical dosimetry*, Radiat. Meas. **41**, S78-S99 (2007).
- B.L. Justus, K.J. Pawlovich, C.D. Merritt, and A.L. Huston, *Optically and thermally stimulated luminescence characteristics* of Cu<sup>+</sup>-doped fused quartz. Radiat. Prot. Dosim. 81, 5-10 (1999).
- A.L. Huston, B.L. Justus, P.L. Falkenstein, R.W. Miller, H. Ing, and R. Altemus *Remote optical fibre dosimetry*. Nucl. Instr. Meth. B, 184, 55-77 (2001).

- 25. G. Ranchoux, S. Magne, J.P. Bouvet, and P. Ferdinand, *Fiber remote optoelectronic gamma dosimetry based on optically stimulated luminescence of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C. Radiat. Prot. Dosim. 100, 255-260 (2002).*
- 26. C. Anderson, RL and OSL Dosimetry and its medical application, AIP, These Proceedings, 2010.
- J.C.R. Mittani, A.A.R.d Silva, F. Vanhavere, M.S., Akselrod, E.G. Yukihara, *Investigation of neutron converters for production of optically stimulated luminescence (OSL) neutron dosimeters using Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C. Nucl. Instr. Meth. B, 260, 663-671 (2007).*
- 28. E.G. Yukihara, J.C. Mittani, F. Vanhavere, and M.S Akselrod, *Development of new optically stimulated neutron dosimeters*. Radiat. Meas. **43**, 309-314 (2008).
- 29. G. M. Akselrod, M. S. Akselrod, E. R. Benton, and N. Yasuda, *A Novel Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fluorescent nuclear track detector for heavy charged particles and neutrons*, Nucl. Instr. Meth. B 247, 296-306 (2006).
- M. S. Akselrod, A. E. Akselrod, New Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C,Mg crystals for radiophotoluminescent dosimetry and optical imaging of tracks produced by heavy charge particles, Radiat Prot. Dosim. 119 (1-4), 218-221 (2006).
- 31. M. S Akselrod, R. C. Yoder, G. M. Akselrod, *Confocal fluorescent imaging of tracks from heavy charged particles utilizing new Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: C,Mg crystals, Rad. Prot. Dosim. 119(1-4), 357-362 (2006).*
- 32. G.J. Sykora, M.S. Akselrod, M. Salasky, S.A. Marino Novel Al2O3: C,Mg fluorescence nuclear track detectors for passive neutron dosimetry. Radiat. Prot. Dosim. 126, 278-283 (2007).
- G.J. Sykora and M.S. Akselrod, Novel fluorescent nuclear track detector technology for mixed neutron-gamma fields, Radiation Measurements., Radiat. Meas. 45 (3-6), 594-598 (2010).
- 34. G.J. Sykora and M.S. Akselrod, , *Photoluminescence study of photochromically and radiochromically transformed Al*<sub>2</sub>*O*<sub>3</sub>:*C*,*Mg crystals used for fluorescent nuclear track detectors*, Radiat. Meas. **45** (3-6), 631-634 (2010).
- 35. G.J., Sykora, M.S. Akselrod, F.Vanhavere, *Performance of fluorescence nuclear track detectors in monoenergetic and broad spectrum neutron fields*. Radiat. Meas. **44**, 988-991 (2009).
- 36. G.J. Sykora, M. Salasky, and M.S. Akselrod, *Properties of novel fluorescent nuclear track detectors for use in passive neutron dosimetry*, Radiat. Meas. **43**, 1017-1023 (2008).
- 37. G.J. Sykora, M.S. Akselrod, E.R. Benton, and N. Yasuda, *Spectroscopic properties of novel fluorescent nuclear track detectors for high and low LET charged particles*, Radiat. Meas. **43**, 422-426 (2008).
- M. S. Akselrod, A. E. Akselrod, S.S. Orlov, S. Sanyal and T.H. Underwood, *Fluorescent aluminum oxide crystals for volumetric optical Data Storage and Imaging Applications*, J. of Fluorescence, 13, 503-511 (2003).
- 39. S. Sanyal and M. S. Akselrod, *Anisotropy of optical absorption and fluorescence in Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: C,Mg crystals*, J. Appl. Phys. **98**, 033518 (2005).
- 40. A. Diaspro, Ed., Confocal and two-photon microscopy: Foundations, applications, and advances, New-York: Wiley, 2002.
- V.V. Antonov-Romanovskii, I.B. Keirum-Marcus, M.S. Poroshina, and Z.A. Trapeznikova, *IR stimulable phosphors*, In: *Conference of the Academy of Sciences of the USSR on the Peaceful Uses of Atomic Energy*, Moscow, 1955. USAEC Report AEC-tr-2435, 239-250 (1956).
- 42. E.N. Sanborn and E.L. Beard, *Sulfides of strontium, calcium, and magnesium in infrared-stimulated luminescence dosimetry*. In: Proc. 1<sup>st</sup> Int. Conf. on Luminescence Dosimetry, Stanford, June 1965, USAEC, 183-191, (1967).
- 43. D.J. Huntley, D.L. Godfrey-Smith, and M.L.W. Thewalt, Optical dating of sediments. Nature 313, 105-107 (1985).
- 44. A. Meijerink, W.J. Schipper, and G. Blasse, *Photostimulated luminescence and thermally stimulated luminescence of Y*<sub>2</sub>*SiO*<sub>5</sub>-*Ce*, *Sm*. J. Phys. D **24**, 997-1002 (1991).
- 45. W.J. Schipper, J.J. Hamelink, and G. Blasse, *The X-Ray storage properties of barium phosphate doped with trivalent rare earth ions.* Phys. Stat. Sol. (a) **141**, 231-238 (1994).
- 46. L.E. Trinkler, M.F. Trinkler, and A.I. Popov, *Stimulation Energy of the X-Ray Storage Material KBr: In.* Phys. Stat. Sol. (b) **180**, K31-K34 (1993).
- 47. H.O. Albrecht, C.E. Mandeville, Storage of energy in BeO. Phys. Rev. 101, 1250 (1956).
- 48. E. Tochilin, N. Goldstein, and W.G. Miller, Beryllium oxide as a thermoluminescent dosimeter, Health Phys. 16, 1-7 (1969).
- G. Scarpa, The dosimetric use of beryllium oxide as a thermoluminescent material: A preliminary study. Phys. Med. Biol. 15, 667-672 (1970).
- 50. R. B. Gammage, K.W. Crase, K. Becker, *Role of Silicon Activator in Exoelectron Emission from BeO*, Health Phys. **22**(1), 57-63 (1972).
- 51. E. Bulur, , H.Y. Göksu, OSL from BeO ceramics: new observations from an old material. Radiat. Meas. 29, 639-650 (1998).
- 52. M. Sommer and J. Henniger, *Investigations of a BeO-based optically stimulation luminescence dosimeter*. Radiat. Prot. Dosim. **119**, 394–397 (2006).
- 53. M. Sommer, , R. Freudenberg, , J. Henniger, New aspects of a BeO-based optically stimulated luminescence dosimeter. Radiat. Meas. 42, 617–620 (2007).
- M. Sommer, A. Jahn, J. Henniger, Beryllium oxide as optically stimulated luminescence dosimeter, Radiat. Meas. 43, 353– 356 (2008).
- 55. A.S. Pradhan and K. Ayyangar, *Radiation dosimetry by photostimulated luminescence of CaSO4: Dy.* Int. J. Appl. Radiat. Isotopes **28**, 534-535 (1977).
- 56. R. Bernhardt and L. Herforth, *Radiation dosimetry by optically stimulated phosphorescence of CaF<sub>2</sub>:Mn.* In: Proc. 4<sup>th</sup> Int. Conf. Lumin. Dosimetry. Krakow, Poland, 1091-1104 (1974).
- 57. S.D. Miller, G.W.R. Endres, J.C. McDonald, and K.L. Swinth, *Cooled optically stimulated luminescence in CaF<sub>2</sub>:Mn*. Radiat. Prot. Dosim., **25**, 201-205 (1988).

- R.C. Yoder, and M.R. Salasky, A dosimetry system based on delayed optically stimulated luminescence. Health Phys. 72, S18-S19 (1997).
- E. Bulur, An alternative technique for the optically stimulated luminescence experiment. Radiat. Meas. 26, 701–709 (1996).
   A.M. Stoneham, *Theory of defects in solids*, Oxford: Clarendon Press, 1975.
- 61. P. Braunlich, D. Schafer, and A. Scharmann, A simple model for thermoluminescence and thermally stimulated conductivity of inorganic photoconducting phosphors and experiments pertaining to infra-red stimulated luminescence. In: Proc. 1<sup>st</sup> Int. Conf. on Luminescence Dosimetry, Stanford, June 1965, USAEC, 57-73 (1967).
- 62. J.K. Rieke, and F. Daniels, Thermoluminescence studies of aluminum oxide. J. Phys. Chem., 61, 629-633 (1957).
- 63. W.G. Buckman, Aluminum oxide thermoluminescence properties for detecting radiation, Health Phys. 22, 402-402 (1972).
- 64. R.S. McDougall, and S. Rudin, *Thermoluminescent dosimetry of aluminum oxide*. Health Physics, **19**, 281-283 (1970).
- 65. S.K. Mehta, and S. Sengupta, *Gamma dosimetry using Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Si,Ti thermoluminescent phosphor*. Phys. Med. Biol., **21**, 955-964 (1976).
- 66. M. Osvay, and T. Biro, Aluminum oxide in TL dosimetry. Nucl. Instr. Meth., 175, 60-61 (1980).
- 67. D. Lapraz, P., Iacconi, Y. Sayady, P. Keller, J. Barthe, and G. Portal, *Some thermoluminescence of an α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sample*, Phys. Stat. Sol. (a) **108**, 783-794 (1988).
- P. Pokorny and A. Ibarra, On the origin of the thermoluminescence of α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: Cr, Ni. J. Phys.: Condens. Matter, 5, 7387-7396 (1993).
- 69. B. D. Evans and M. Stapelbroek, *Optical properties of the F*<sup>+</sup> centre in crystalline Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Phys. Rev. B **18**, 7089-7098 (1978).
- 70. K. H. Lee and J. H. Crawford, Electron centers in single crystal Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Phys. Rev. B 15, 4065-4074 (1977).
- L. E.Colyott, M.S. Akselrod, and S.W.S. McKeever, *Phototransferred thermoluminescence in α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*, Radiat. Prot. Dosim. 65 263-266 (1996).
- 72. E. G. Yukihara, V.H. Whitley, S.W.S. McKeever, A.E. Akselrod, and M.S. Akselrod, *Effect of high-dose irradiation on the optically stimulated luminescence of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C. Rad. Meas. 38, 317-330 (2004).*
- 73. S.W.S. McKeever, Optically Stimulated Luminescence Dosimetry. Nucl. Instrum. Meth. B. 184, 29-54 (2001).
- 74. S.W.S. McKeever and M. Moscovitch, On the advantages and disadvantages of optically stimulated luminescence dosimetry and thermoluminescence dosimetry. Radiat. Prot. Dosim. **104**, 263-270 (2003).
- 75. V.H. Whitley and S.W.S. McKeever, *Photoionization of deep centers in Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*. J. Appl. Phys. 87, 249-256 (2000).
- 76. E.G. Yukihara, V.H. Whitley, J.C. Polf, D.M. Klein, S.W.S. McKeever, A. E., Akselrod, M. S. Akselrod, *The effects of deep trap population on the thermoluminescence of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C*, Radiat. Meas. **37**, 627-638 (2003).
- 77. G. Molnar, M. Benabdesselam, J. Borossay, P. Iacconi, D. Lapraz, and M.S. Akselrod, *Influence of the irradiation* temperature on the dosimetric and high temperature TL peaks of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C, Radiat. Prot. Dosim. **100**, 139-142 (2002).
- 78. E. G. Yukihara, R. Gaza, S.W.S. McKeever, and C.G. Soares, *Optically stimulated luminescence and thermoluminescence efficiencies for high-energy heavy charged particle irradiation in Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C. Rad. Meas. 38, 59-70 (2004).*
- 79. C. Passmore, M. Kirr, and M. Salasky. Internal Landauer report, (2008).
- 80. E.G. Yukihara et al. OSU-Landauer internal report, (2008).
- L. Bøtter-Jensen, K.J.Thomsen, M.Jain Review of optically stimulated luminescence (OSL) instrumental developments for retrospective dosimetry Radiat. Meas. 45 253–257 (2010).
- 82. K.J. Thomsen, L. Bøtter-Jensen, M. Jain, P.M. Denby, A.S. Murray, *Recent instrumental developments for trapped electron dosimetry*. Radiat. Meas. **43**, 414–421 (2008).
- 83. A. Jahn, M. Sommer, J. Henniger, 2D-OSL-dosimetry with beryllium oxide, Radiat. Meas. 45, 674-676 (2010).
- E. R. Benton, E. V. Benton, A. L. Frank, *Passive dosimetry aboard the Mir Orbital Station: internal measurements*, Radiat. Meas. 35(5) 443-460 (2002).
- 85. E. V. Benton, R.A. Oswald, A. L. Frank, R.V. Wheeler, *Proton-recoil neutron dosimeter for personnel monitoring*, Health Phys. **40** 801-809 (1981).
- 86. F.H. Attix. Introduction to radiological physics and radiation dosimetry, New York: John Wiley & Sons, 1986 pp. 476-477.
- 87. H.H. Rossi and M. Zaider, Microdosiemtry and its applications, Berlin: Springer, 1996.
- 88. D.N. Slatkin, et al., Proc. Natl. Acad. Sci. USA 92, 8783-8787 (1995).
- 89. J. Bartz, G.J. Sykora and E. Brauer-Krisch, M.S. Akselrod, *Imaging and dosimetry of synchrotron microbeams with aluminum oxide fluorescent detectors*, Book of Abstracts, SSD-16 conference, Sydney (2010).
- 90. G.J. Sykora, *Photo- and radiochromic transformations in Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C, Mg fluorescent nuclear track detectors and high resolution imaging of radiation fields*, Ph.D. Dissertation, Oklahoma State University, Feb., 2010.