



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21)(22) Заявка: 2013117586/28, 16.04.2013

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
16.04.2013

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: 16.04.2013

(45) Опубликовано: 20.10.2014 Бюл. № 29

(56) Список документов, цитированных в отчете о
поиске: RU 2445646 C2, 20.03.2012. RU
2449316 C2, 27.04.2012; . US 20100200741 A1,
12.08.2010; . EP 1712932 A1, 18.10.2006

Адрес для переписки:

620002, г.Екатеринбург, ул. Мира, 19, УрФУ,
Центр интеллектуальной собственности, Марк
Т.В.

(72) Автор(ы):

ШУЛЬГИН Борис Владимирович (RU),
БЕКТАШОВ Алмаз Сагындыкович (KG),
МОИСЕЙКИН Евгений Витальевич (RU),
МИЛЬМАН Игорь Игоревич (RU),
ВЛАСОВ Максим Игоревич (RU),
ИВАНОВ Владимир Юрьевич (RU),
КИДИБАЕВ Мустафа Мусаевич (KG),
ДЕНИСОВ Геннадий Степанович (KG),
ИЩЕНКО Алексей Владимирович (RU)

(73) Патентообладатель(и):

Федеральное государственное автономное
образовательное учреждение высшего
профессионального образования "Уральский
федеральный университет имени первого
Президента России Б.Н. Ельцина" (RU)

(54) РАБОЧЕЕ ВЕЩЕСТВО ОСЛ-ДЕТЕКТОРА

(57) Реферат:

Изобретение относится к области дозиметрии ионизирующих излучений, а именно к области оптически стимулированной люминесцентной (ОСЛ) дозиметрии, связанной с разработкой и применением рабочих веществ для ОСЛ-детекторов, пригодных для регистрации рентгеновского, гамма- и электронного излучения, а также для регистрации тепловых нейтронов. Сущность изобретения заключается в том, что рабочее вещество ОСЛ-детектора для дозконтроля в смешанных полях ионизирующих излучений, включающее фторид натрия, хлорид

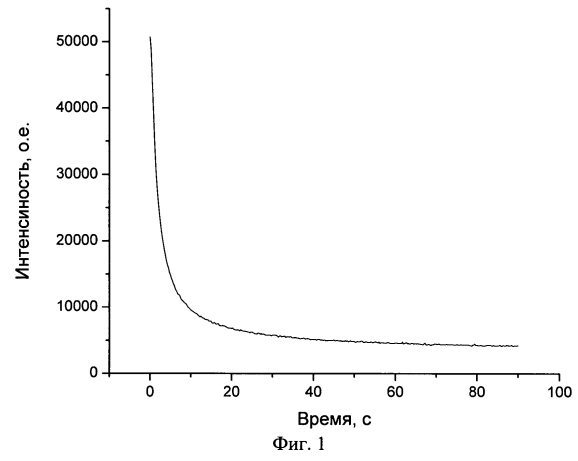
или фторид меди, дополнительно содержит фторид лития ${}^6\text{LiF}$ при следующем соотношении компонентов (мол.%):

NaF	95,9-98,99
$\text{CuCl}_2/\text{CuF}_2$	0,01-0,1
${}^6\text{LiF}$	1-4

Технический результат - регистрация рентгеновского, гамма- и электронного излучения, а также регистрация тепловых нейтронов. 3 ил., 2 табл.

RU 2 531 044 C1

RU 2 531 044 C1



RU 2531044 C1

RU 2531044 C1



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21)(22) Application: 2013117586/28, 16.04.2013

(24) Effective date for property rights:
16.04.2013

Priority:

(22) Date of filing: 16.04.2013

(45) Date of publication: 20.10.2014 Bull. № 29

Mail address:

620002, g.Ekaterinburg, ul. Mira, 19, UrFU, Tsentr
intellektual'noj sobstvennosti, Marks T.V.

(72) Inventor(s):

ShUL'GIN Boris Vladimirovich (RU),
BEKTAShOV Almaz Sagyndykovich (KG),
MOISEJKIN Evgenij Vital'evich (RU),
MIL'MAN Igor' Igorevich (RU),
VLASOV Maksim Igorevich (RU),
IVANOV Vladimir Jur'evich (RU),
KIDIBAEV Mustafa Musaevich (KG),
DENISOV Gennadij Stepanovich (KG),
IShchENKO Aleksej Vladimirovich (RU)

(73) Proprietor(s):

Federal'noe gosudarstvennoe avtonomnoe
obrazovatel'noe uchrezhdenie vysshego
professional'nogo obrazovanija "Ural'skij
federal'nyj universitet imeni pervogo Prezidenta
Rossii B.N. El'tsina" (RU)

(54) **WORKING MEDIUM FOR OPTICALLY STIMULATED LUMINESCENCE DETECTOR**

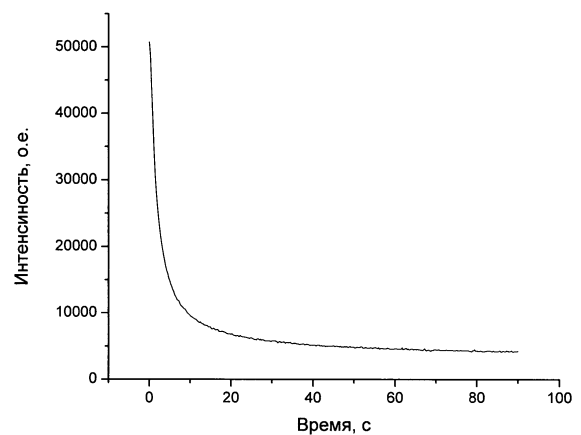
(57) Abstract:

FIELD: physics.

SUBSTANCE: invention relates to optically stimulated luminescent (OSL) dosimetry, associated with developing and using working media for OSL detectors suitable for detecting X-ray, gamma and electron radiation and for detecting slow neutrons. The working medium for an OSL detector for dosimetry in mixed fields of ionising radiations, which includes sodium fluoride, copper chloride or fluoride, further contains lithium fluoride ⁶LiF with the following ratio of components (mol %): NaF 95.9-98.99; CuCl₂/CuF₂ 0.01-0.1; ⁶LiF 1-4.

EFFECT: detecting X-ray, gamma and electron radiation, as well as slow neutrons.

3 dwg, 2 tbl



Фиг. 1

RU 2 531 044 C1

RU 2 531 044 C1

Изобретение относится к области дозиметрии ионизирующих излучений, а именно к области оптически стимулированной люминесцентной (ОСЛ) дозиметрии, связанной с разработкой и применением рабочих веществ ОСЛ-детекторов, пригодных для регистрации рентгеновского, гамма- и электронного излучения, а также для регистрации тепловых нейтронов.

Оптически стимулированная люминесценция (ОСЛ) является весьма перспективным методом регистрации рентгеновского, гамма-, электронного излучений, а также быстрых нейтронов и находит все большее применение в персональной дозиметрии [1-6].

Известно рабочее вещество ОСЛ-детектора на основе анион-дефектного корунда $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, находящее все более широкое распространение в ведущих дозиметрических лабораториях мира [1-6]. Известное рабочее вещество на основе анион-дефектного корунда $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ чувствительно к рентгеновскому, гамма- и бета-излучению [1-6].

Кривые затухания ОСЛ известного рабочего вещества имеют высокую начальную интенсивность I_0 , описываются суммой двух экспонент, обладают большой светосуммой S и малым временем t высвечивания светосуммы. Однако известное рабочее вещество ОСЛ детектора на основе анион-дефектного корунда обладает низкой эффективностью регистрации тепловых нейтронов из-за низкого сечения взаимодействия тепловых нейтронов с веществом $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, то есть информация о нейтронной составляющей в смешанных полях ионизирующих излучений не фиксируется при использовании известного детектора.

Известно рабочее вещество ОСЛ-детектора на основе нитрида алюминия AlN [7]. Известное рабочее вещество для ОСЛ-детектора на основе AlN чувствительно к бета-излучению источника $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. Кривые затухания ОСЛ удовлетворительно описываются двумя экспонентами с большими постоянными времени затухания, равными соответственно 28,4 с и 234 с [7]. Однако известное рабочее вещество ОСЛ-датчика на основе AlN непригодно для регистрации тепловых нейтронов из-за низкого сечения взаимодействия тепловых нейтронов с веществом сенсорного ОСЛ-датчика и соответственно непригодно для осуществления дозконтроля в смешанных полях ионизирующих излучений.

Известно рабочее вещество ОСЛ-детектора на основе сульфида магния для регистрации гамма-излучения [8]. Однако известное рабочее вещество ОСЛ-детектора на основе сульфида магния непригодно для регистрации тепловых нейтронов из-за низкого сечения взаимодействия тепловых нейтронов с веществом сенсорного ОСЛ-датчика и соответственно непригодно для осуществления дозконтроля в смешанных полях ионизирующих излучений, поскольку информация о нейтронной составляющей такого поля не может быть получена с помощью известного сенсорного ОСЛ-датчика.

Наиболее близкими по составу для предлагаемого рабочего вещества ОСЛ-детектора являются известные рабочие вещества ОСЛ-детектора рентгеновского, гамма- и электронного излучения на основе как неактивированных кристаллов NaF , так и на основе активированных кристаллов NaF : 0,1 мол.% CuCl_2 , NaF : 0,3 мол.% CuF_2 [9].

Кривые затухания ОСЛ для этих кристаллов достаточно хорошо описываются суммой двух экспонент [9] в соответствии с уравнением (1):

$$I = I_0 + A_1 \cdot e_1^{-t/t_1} + A_2 \cdot e_2^{-t/t_2}, \quad (1)$$

где A_1 и A_2 - предэкспоненциальные множители, t_1 и t_2 - постоянные времени затухания. Общая светосумма определяется как результат сложения светосумм, обусловленных каждой из компонент затухания ОСЛ по формуле:

$$S \approx \sum A_k \cdot t_k \quad (2)$$

В Табл. 1 приведены данные по суммарной интенсивности, светосумме и времени регистрации послесвечения (интегрирования ОСЛ) для вышеупомянутых известных ОСЛ-рабочих веществ, облученных тестовой дозой рентгеновского излучения: $U=40$ кВ, $I=40$ мкА, время облучения 1 мин.

Состав ОСЛ-сенсора	Интенсивность I_0 , о.е.	Светосумма S, о.е.	Время интегрирования ОСЛ, с
NaF	41954	162095	15
NaF:0,1 мол.% Cu	50117	512123	45
NaF:0,3 мол.% Cu	47393	479033	40

Наибольшей интенсивностью ОСЛ и светосуммой, как видно из Табл. 1, обладают кристаллы NaF: 0,1 мол.% Cu. Однако известные ОСЛ-рабочие вещества чувствительны только к рентгеновскому, гамма- и электронному излучению. Они не чувствительны к тепловым нейтронам. Таким образом, недостатком известных рабочих веществ для ОСЛ-дозиметрии является их непригодность для регистрации тепловых нейтронов из-за низкого сечения взаимодействия тепловых нейтронов с веществом ОСЛ-датчика, соответственно известные ОСЛ-сенсоры непригодны для осуществления дозконтроля в смешанных полях ионизирующих излучений.

Задачей изобретения является разработка рабочих веществ ОСЛ-детекторов, чувствительных не только к рентгеновскому, гамма и электронному излучению, но и к тепловым нейтронам, то есть рабочих веществ, пригодных для осуществления дозиметрического контроля в смешанных с тепловыми нейтронами полях ионизирующих излучений.

Поставленная задача решается путем разработки нового рабочего вещества для ОСЛ-детектора на базе кристаллов NaF: $CuCl_2/CuF_2$, которое дополнительно содержит компоненту в виде фторида лития 6LiF , содержащего изотоп 6Li , чувствительный к тепловым нейтронам, что обеспечивает дозкон-троль в смешанных полях ионизирующих излучений.

Сущность изобретения состоит в том, что рабочее вещество ОСЛ-детектора для дозконтроля в смешанных полях ионизирующих излучений, включающее фторид натрия, хлорид или фторид меди, дополнительно содержит фторид лития 6LiF при следующем соотношении компонентов (мол.%):

NaF	95,9-98,99
$CuCl_2$ или CuF_2	0,01-0,1
6LiF	1-4

Предложенное рабочее вещество ОСЛ-детектора обеспечивает чувствительность детектора не только к рентгеновскому, гамма- и электронному излучению, но и к тепловым нейтронам. Кривые затухания ОСЛ для этих кристаллов приведены на Фиг. 1-3. Предложенное рабочее вещество ОСЛ-детектора имеет достаточно высокие рабочие характеристики, Табл. 2, обеспечивающие возможность его применения в дозиметрической практике. Начальная I_0 интенсивность ОСЛ для наиболее эффективных из предложенных составов, как показали сравнительные измерения, проведенные для

одних и тех условий возбуждения и оптической стимуляции, оказывается того же порядка что I_0 для ОСЛ-детекторов на основе анион-дефектного корунда. Для пограничных составов начальная I_0 интенсивность ОСЛ вполне достаточна для надежной регистрации излучения, Табл.2. Как показал анализ зависимости световыхода ОСЛ от содержания меди, оптимальное содержание меди не должно заметно превышать 0,01 мол.%. Допустимо содержание меди до 0,3 мол.%, Табл.2. Увеличение содержания меди в предлагаемом светосоставе выше 0,3 мол.% ведет к уменьшению I_0 и S ниже допустимых пределов. Измеренные кривые ОСЛ для случая возбуждения образцов рентгеновским излучением ($U=40$ кВ, $I=40$ мкА, время облучения 1 мин), стимуляция белым светодиодом, приведены для образцов:

NaF: 1 мол.% ${}^6\text{LiF}$, 0,01 мол.% CuF_2 на Фиг.1 (Пример. 1);

NaF: 2 мол. % ${}^6\text{LiF}$, 0,1 мол.% CuF_2 на Фиг.2 (Пример 2);

NaF: 4 мол.% ${}^6\text{LiF}$, 0,3 мол.% CuF_2 на Фиг.3 (Пример.3).

В качестве фотоприемника использовали ФЭУ-142. При облучении вышеуказанных ОСЛ-сенсоров электронами или гамма-излучением наблюдаются кривые ОСЛ, аналогичные кривым, приведенным на Фиг.1-3.

Таблица 2

Характеристики предлагаемых рабочих веществ ОСЛ-детекторов на основе кристаллов $\text{NaF-}{}^6\text{LiF}$, активированных медью

№	Состав рабочего вещества для ОСЛ-детектора, мол.%	Интенсивность I_0 , о.е.	Светосумма S , о.е.	Время интегрирования ОСЛ, с
1	NaF: 1 ${}^6\text{LiF}$, 0,01 CuF_2	50774	1579583	40
2	NaF: 2 ${}^6\text{LiF}$, 0,1 CuF_2	17776	234154	10
3	NaF: 4 ${}^6\text{LiF}$, 0,3 CuF_2	10309	204268	10

Аналогичные результаты получены для следующих образцов рабочих ОСЛ-веществ при облучении гамма- или электронным излучением:

NaF: 1 мол.% ${}^6\text{LiF}$, 0,001 мол.% CuF_2 ;

NaF: 2 мол.% ${}^6\text{LiF}$, 0,1 мол.% CuF_2 ;

NaF: 4 мол.% ${}^6\text{LiF}$, 0,3 мол.% CuF_2 .

Пример 1. Рабочее вещество ОСЛ-детектора.

Вырастили по методу Киропулоса кристалл на основе NaF, с добавками (в мол.%) ${}^6\text{LiF}$ 1,0, CuF_2 0,01. Подготовили образец размерами $10 \times 10 \times 1$ мм и измерили характеристики ОСЛ, Табл.2, строка 1, для следующих условий облучения и стимуляции: возбуждение образцов проводили рентгеновским излучением ($U=40$ кВ, $I=40$ мкА, время облучения 1 мин), стимуляцию проводили с помощью светодиода СДК-С469-5-10. В качестве фотоприемника использовали фотоэлектронный умножитель ФЭУ-142. Светосумма составила 1579583 о.е. Оказалось, что светосумма предлагаемого ОСЛ-рабочего вещества не уступает светосумме ОСЛ-сенсора на основе анион-дефектного корунда $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, эксперименты для которого были параллельно проведены с использованием того же оборудования.

После облучения образца NaF: 1 мол. % ${}^6\text{LiF}$, 0,01 мол.% CuF_2 тепловыми нейтронами (использовались нейтроны от источника калифорний-252, замедленные до тепловых энергий) до флюенса порядка 10^5 - 10^7 см^{-2} , наблюдается ОСЛ на уровне 120000 о.е., что

достаточно для уверенной регистрации сигнала.

Пример 2. Рабочее вещество ОСЛ-детектора.

Вырастили по методу Киропулоса кристалл на основе NaF с добавками (в мол.%)

^6LiF 2,0 и CuF_2 0,1. Подготовили образец размерами $10 \times 10 \times 1$ мм и измерили

характеристики ОСЛ, Табл. 2, строка 2, для тех же условий облучения и стимуляции, что и в примере 1: возбуждение образцов проводили рентгеновским излучением ($U=40$ кВ, $I=40$ мкА, время облучения 1 мин), стимуляцию проводили с помощью светодиода СДК-С469-5-10. В качестве фотоприемника использовали фотоэлектронный умножитель ФЭУ-142. Светосумма составила 234154 о.е., то есть уменьшилась в 6,75 раз. Уменьшение светосуммы связано с увеличением концентрации медной добавки.

После облучения образца NaF: 2 мол. % ^6LiF , 0,1 мол. % CuF_2 тепловыми нейтронами (использовались нейтроны от источника калифорний-252, замедленные до тепловых энергий) до флюенса порядка 10^5 - 10^7 см⁻², наблюдается ОСЛ на уровне 60000 о.е., что достаточно для уверенной регистрации сигнала.

Пример 3. Рабочее вещество ОСЛ-детектора.

Вырастили по методу Киропулоса кристалл на основе NaF с добавками (в мол.%)

^6LiF 4,0 и CuF_2 0,3. Подготовили образец размерами $10 \times 10 \times 1$ мм и измерили

характеристики ОСЛ, Табл. 2, строка 3, для тех же условий облучения и стимуляции, что и в примере 1: возбуждение образцов проводили рентгеновским излучением ($U=40$ кВ, $I=40$ мкА, время облучения 1 мин), стимуляцию проводили с помощью светодиода СДК-С469-5-10. В качестве фотоприемника использовали фотоэлектронный умножитель ФЭУ-142. Светосумма составила 204268 о.е., то есть уменьшилась в 7,73 раза по сравнению с первым составом. Уменьшение светосуммы также связано с увеличением концентрации медной добавки.

После облучения образца NaF: 4 мол. % ^6LiF , 0,3 мол. % CuF_2 тепловыми нейтронами (использовались нейтроны от источника калифорний-252, замедленные до тепловых энергий) до флюенса порядка 10^5 - 10^7 см⁻², наблюдается ОСЛ на уровне 50000 о.е., что достаточно для уверенной регистрации сигнала.

Примеры 4-6. Рабочее вещество ОСЛ-детектора.

Вырастили по методу Киропулоса кристаллы на основе NaF с добавками (мол.%): LiF 1,0 и CuF_2 0,1 (пример 4); LiF 2,0 и CuF_2 0,1 (пример 5); LiF 4,0 и CuF_2 0,3 (пример

6). При этом использовался реактив LiF с естественной смесью изотопов лития, в котором изотопы ^6Li составляют не более 7,4%. Подготовили образец размерами $10 \times 10 \times 1$ мм и измерили характеристики ОСЛ для следующих условий облучения и стимуляции: возбуждение образцов проводили тепловыми нейтронами (использовались нейтроны от источника калифорний-252, замедленные до тепловых энергий) до флюенса порядка 10^5 - 10^6 см⁻², стимуляцию проводили с помощью белого светодиода. В качестве фотоприемника использовали фотоэлектронный умножитель ФЭУ-142. Светосумма снизилась до 2000-2500 о.е., что в 60 раз ниже таковой для примера 1 и недостаточно для уверенного приема сигналов.

Анализ примеров 1-6 показывает, что для уверенной регистрации сигналов ОСЛ при работе в смешанных полях ионизирующих излучений в состав рабочих веществ ОСЛ-детекторов должны входить фториды меди в количестве не более 0,3 мол.%, оптимально 0,001 мол.%, а также фторид лития в количестве 1-4 мол.%, причем литий должен входить

в виде изотопа ${}^6\text{Li}$.

Технический (эффект) результат. Предложенное рабочее вещество для ОСЛ-детектора состава (мол.%):

5	NaF	95,9-98,99
	CuCl ₂ /CuF ₂	0,01-0,1
	${}^6\text{LiF}$	1-4

обеспечивает регистрацию не только рентгеновского, гамма- и электронного излучения, но и тепловых нейтронов.

10 Литература

[1] L. Benner-Jensen, N. Agernap Larsen, B.G. Markey, S.W.S. McKeever // Ra-diat. Measurements, 1997, vol.27. PP.295-298;

[2] S.W.S. McKeever, M.S. Akselrod // Radiat. Protec. Dosim.1999. vol. 84, PP.317-320.

15 [3] G.O. Sawakuchi, e.G. Yukihara, S.W.S. McKeever, E.R.Benton. Overlap of Heavy Charged Particle Tracks and the Change in Shape of Optically Stimulated Luminescence Curves of Al₂O₃:C.Dosimeters. Radiation Measurements, 2008, v.43, pp.194-198.

[4] И.И.Мильман, А.И.Сюрдо, С.В.Соловьев, Р.М.Абашеев. Проблемы спектроскопии и спектрометрии, вузовско-академический сборник научных трудов, Екатеринбург, УрФУ, 2011, вып.29, с.63-72.

20 [5] USA Patent 7009181, S.D. Miller, L.E. Smith, J.R.Scopic. 03.07.2006.

[6] Патент 2310889 РФ (МПК G01T 1/11, 1/06, 1/29). заявл. 07.08. 2006. опубл. 20.11. 2007. Бюл.№32; И.И.Мильман, С.В.Никифоров, Е.В.Моисейкин, И.Г.Ревков).

25 [7] А.С. Вохминцев, Д.М. Спиридонов, Д.В. Чайкин, Н.А. Кравец, И.А. Вайнштейн. /Проблемы спектроскопии и спектрометрии. Вузовско-академический сборник научных трудов. Екатеринбург, УрФУ. 2012. вып.30, с.12-17).

[8] L. Albert, O. Roy, S. Magne, L. Dusseau, J.C Bessiere. Optical fiber sensor based on optically stimulated luminescence for y-radiation detection. 3rd Int.Symp.Luminescent Detectors and Transformers of Ionizing Radiation. LUMDET R'97. Book of Abstracts. Ustron. Poland. 1997, p 1-2.

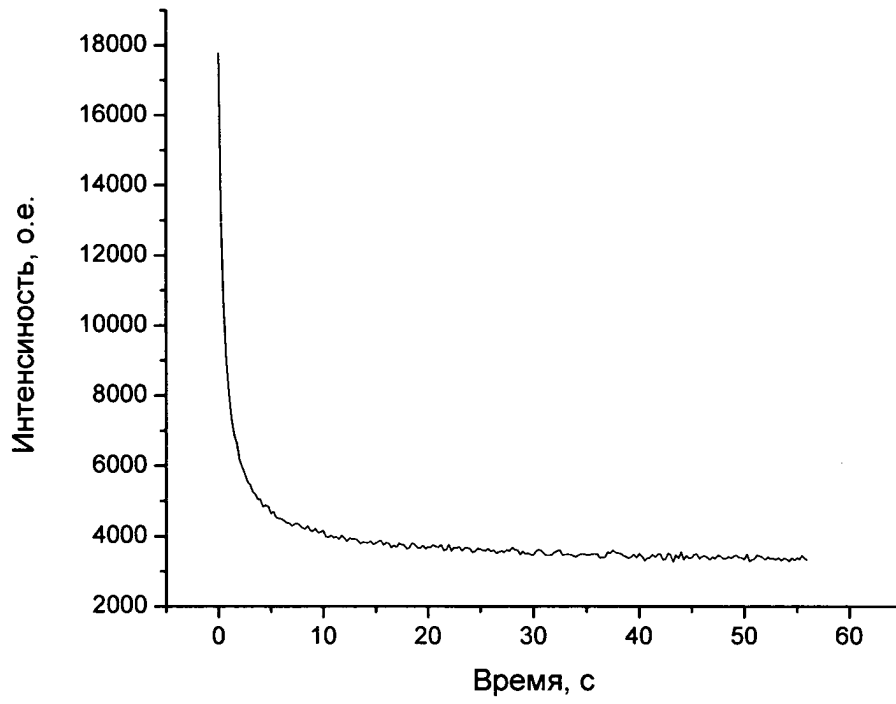
30 [9] А.С.Бекташов, М.М.Кидибаев, Г.С.Денисов, М.И.Власов, И.И.Мильман, Е.В.Моисейкин, А.И.Сюрдо. Оптически стимулированная люминесценция детекторных материалов на основе кристаллов фторида натрия. / Проблемы спектроскопии и спектрометрии. Вузовско-академический сборник научных трудов. Екатеринбург, УрФУ. 2012, вып.31, с. 56-62.

Формула изобретения

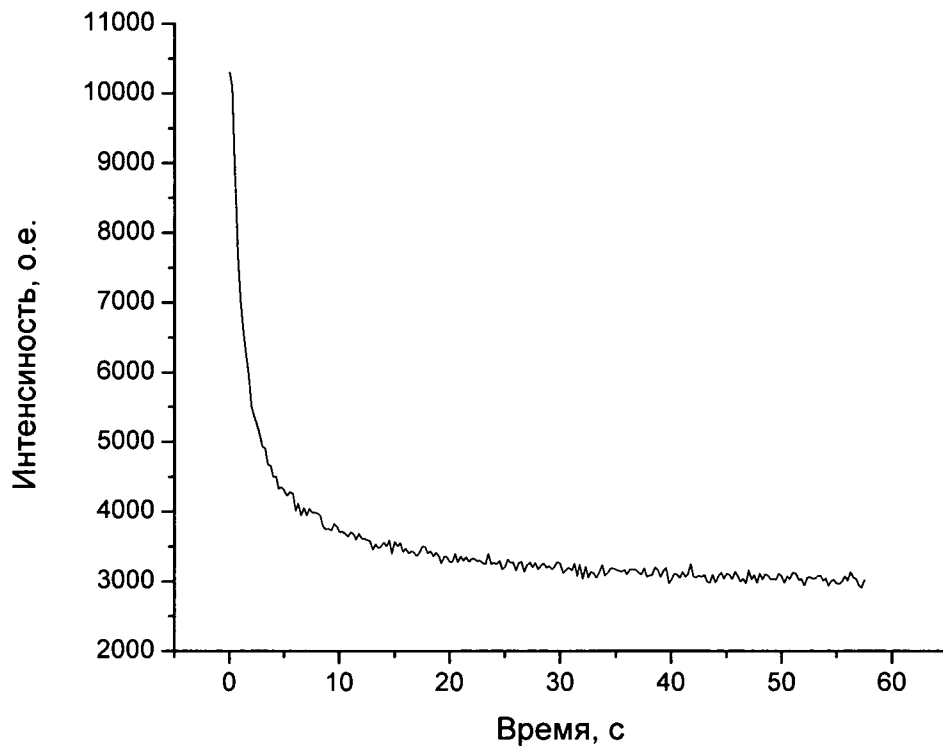
Рабочее вещество ОСЛ-детектора для дозконтроля в смешанных полях ионизирующих излучений, включающее фторид натрия, хлорид или фторид меди,

40 отличающееся тем, что дополнительно содержит фторид лития ${}^6\text{LiF}$ при следующем соотношении компонентов (мол.%):

45	NaF	95,9-98,99
	CuCl ₂ /CuF ₂	0,01-0,1
	${}^6\text{LiF}$	1-4



Фиг.2



Фиг.3