

NaCl:Cu烧结剂量片在X/γ辐照下的光释光特性

李哲旭 李新换 贺三军 周芷千 刘丽艳 于万塘 赵修良

Photoluminescence characteristics of NaCl: Cu sintered dose tablets under X/γ irradiation

Li Zhe-Xu Li Xin-Huan He San-Jun Zhou Zhi-Qian Liu Li-Yan Yu Wan-Tang Zhao Xiu-Liang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 137801 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220014

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220014>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

单层MoS₂薄膜的NaCl双辅助生长方法

Growth of monolayer MoS₂ films dual-assisted by NaCl

物理学报. 2022, 71(12): 128104 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220273>

利用Pr₇₀Cu₃₀晶界扩散改善烧结钕铁硼废料矫顽力的研究

Coercivity enhancement of waste Nd-Fe-B magnets by Pr₇₀Cu₃₀ grain boundary diffusion process

物理学报. 2018, 67(6): 067502 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172551>

铜掺杂Cu₂SnSe₄的热电输运性能

Thermoelectric properties of Cu-doped Cu₂SnSe₄ compounds

物理学报. 2020, 69(24): 247102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200861>

温度对飞秒激光脉冲在NaCl溶液中成丝产生的超连续谱的影响

Influence of temperature on supercontinuum generation induced by femtosecond laser filamentation in NaCl solution

物理学报. 2018, 67(18): 184206 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180686>

多晶体光路配置的X射线衍射特性及在表征同步辐射光束线带宽上的应用

Characteristics of multi-crystals monfiguration X-ray diffraction and application in characterizing synchrotron beamline bandwidth

物理学报. 2020, 69(10): 104101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200165>

金属粉末压坯烧结过程的内耗研究

Internal friction characteristics of compacted billet of metal powder in sintering process

物理学报. 2019, 68(12): 126101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190031>

NaCl:Cu 烧结剂量片在 X/ γ 辐照下的光释光特性*李哲旭¹⁾ 李新换²⁾ 贺三军¹⁾ 周芷千³⁾刘丽艳¹⁾ 于万塘¹⁾ 赵修良^{1)†}

1) (南华大学核科学技术学院, 衡阳 421001)

2) (青海民族大学土木与交通工程学院, 西宁 810007)

3) (宜昌市第一人民医院肿瘤科, 宜昌 443099)

(2022 年 1 月 4 日收到; 2022 年 2 月 9 日收到修改稿)

本文以纯 NaCl 和 CuCl 粉末为原料, 采用烧结法制备了尺寸为 $\Phi 5 \times 1.8$ mm 的 NaCl:Cu 圆形剂量片, 将剂量片置入四元件外壳中并用塑料薄膜密封以克服材料的吸湿性, 使用 InLight 200 型光释光自动测量系统研究其光释光特性. 结果发现, 对于 X/ γ 射线, NaCl:Cu 剂量片对于能量较低射线的光释光响应高于能量较高的同种射线. 光释光曲线具有典型的指数衰减特征, 剂量片的偏转角度对测量值影响最大为 13.5%. 原料粒径的均匀度对剂量片光释光响应数据的分布一致性具有较大影响. 重复性测试实验的变异系数 $CV = 2.28\%$, 重复测量数据的一致性较好. 在 1—1000 mGy 剂量范围内随着辐照剂量的增加, NaCl:Cu 烧结剂量片的光释光强度逐渐增加, 且呈现良好的线性关系, 较未掺杂的纯氯化钠光释光响应高 2—4 倍. 通过烧结法制备的 NaCl:Cu 剂量片可用于个人或环境剂量监测用剂量计.

关键词: NaCl:Cu, 光释光, 烧结法, 线性关系**PACS:** 78.60.Lc, 76.30.Mi**DOI:** 10.7498/aps.71.20220014

1 引言

个人剂量计可用于环境与个人辐射剂量监测工作, 在接触到辐射后, 通过佩戴的个人剂量计可获得辐射相关的资料数据, 显示个人剂量当量. 随着核相关产业的迅速发展, 需要研发精确度更高、使用更方便、性价比合理的剂量计. 光释光剂量元件具有可多次重复使用的特点, 但存在价格昂贵、制备工艺复杂等问题, 因此需研发、生产一款性价比高的光释光剂量元件, 并具有推广和应用的价值.

与热释光 (Thermoluminescence, TL) 相比, 光释光 (Optically stimulated luminescence, OSL)

利用光激发光的性质, 在测量及光退火后不会改变剂量片原有的晶格结构及晶格缺陷. 材料 (掺杂或纯碱金属卤化物晶体) 在预先受到一定剂量的辐射后, 用一定波长的光激发该材料可产生光释光, 其所受辐照剂量的大小可依据发光强度进行度量. 张纯祥等^[1]研究了纯 α - Al_2O_3 单晶的热释光发光特性、三维发光谱和光释光衰变曲线. 研究人员使用温梯法生长 α - Al_2O_3 :C 晶体^[2]、将使用温梯法生长的 α - Al_2O_3 :C 单晶破碎和研磨后制成晶态粉体^[3]、使用两次阳极氧化法制备多孔 Al_2O_3 :C 薄膜^[4]的方法, 发现材料的制备方法不同, 热释光及光释光性质不同.

NaCl 本身是一种碱金属卤化物释光材料, 自然

* 国家自然科学基金 (批准号: 12005098)、湖南省教育厅科学研究项目 (批准号: 19A431) 和湖南省教育厅研究生科研创新项目 (批准号: CX20210945) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhaoxiul@163.com

界中分布广泛且获取成本低, Elashmawy^[5] 通过测量埃及市场销售的 5 种不同品牌食盐颗粒和 1 种分析盐颗粒, 得出不同品牌的食盐因其所含杂质成分不同、杂质含量不同而具备不同热释光性质的结论. 近年来为了改进 NaCl 发光性能, 研究人员使用共沉淀法或生长法对 NaCl 分别掺杂 Mn^{2+} 、 Cu^+ 、钙锰离子、镉锰离子、 Dy^{3+} , 研究表明 NaCl 在掺杂不同的离子时具备不同的热释光和光释光响应^[6–20]. Bernal 等^[11] 使用烧结法制作 NaCl:Cu 球团状荧光粉, 其 TL 特性比类似合成的单晶有优势. Gaikwad 等^[12,13] 使用生长法制备了 NaCl:Ca, Cu, P 及 NaCl:Mg, Cu, P 高灵敏度光激发发光材料, 测得其光释光强度是 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 的 14 倍, 且掺杂后 NaCl 的光释光剂量响应比纯 NaCl 要高. 上述研究表明, NaCl 在掺杂某些离子后具有较高的热释光和光释光灵敏性, 有成为光释光个人剂量计的潜质.

多数研究中主要使用生长法制备热释光和光释光测量的材料, 生长法是在尽可能接近热平衡的条件下, 将材料熔化后通过控制温度来控制晶体的生长, 需全程监测且精确控制生长过程的各个环节才能保证晶体的生长质量, 过程控制难度高, 制备速度慢不适合批量生产, 生长完成的样品需切割、打磨后才能制作成用于佩戴的剂量片, 造成材料浪费, 因此需要更加简单且成本低的制作方法来制作适合剂量学应用的高质量材料. 烧结法比生长法简单、成本低, 对制备过程中所用的设备要求也较低, 适合作为批量生产剂量片的方法. 烧结法是一种对材料颗粒的微焊接工艺, 烧结温度通常是泰曼温度或其绝对熔化温度的一半左右. 烧结过程中烧结体内部发生颗粒结合和孔隙结构变化, 粉末颗粒烧结结合成晶粒的聚结体, 烧结体的强度提高. 本文使用文献^[11] 中的烧结法将 NaCl:Cu 制成 $\Phi 5 \times 1.8$ mm 圆形剂量片, 主要研究在 X/ γ 射线辐照条件下的光释光特性, 同时为了克服材料具有的吸湿性、氧化性, 并防止在测量或使用过程中剂量片可能出现的污染, 将烧结完成的剂量片置入四元件外壳中并使用塑料薄膜密封. 研究 NaCl:Cu 剂量片的光释光性质, 发现其具备良好的光释光重复性、线性响应、能量响应与角度响应, 且此剂量片的制备材料容易获得, 制备方法较为简单, 有作为个人及环境辐射检测用的光释光剂量计的价值. 目前, 对使用烧结法制备 NaCl:Cu 剂量片的光释光研究还未见报道.

2 实验方法

本实验采用的原料有, 由国药集团化学试剂有限公司提供的分析纯 (AR) 级别的氯化钠粉末状样品, 纯度为 99.9%; 由国药集团化学试剂有限公司提供的分析纯 (AR) 级别的氯化亚铜粉末状样品, 纯度为 99.5%. 在纯 NaCl 原料中与 NaCl 的辐射敏感性相关的二价杂质^[14] 有 Ca, Mg, Ba, 含量分别为 0.005%, 0.002%, 0.001%, 但与实验中掺杂的亚铜离子比较, Ca, Mg, Ba 杂质含量极少, 因此可以忽略杂质对辐射敏感的影响.

采用烧结法制作 NaCl:Cu 剂量片. 使用精确度能达到小数点后四位的分析天平进行精准称取, 配制氯化亚铜掺杂重量配比为 0.5% 的 NaCl:Cu 原料. 在玛瑙研钵中研磨混合均匀, 降低晶体粒度并预混合; 用 100 目的过筛器进行过筛; 由于发生物质迁移的前提是固相相互接触, 将混合研磨后的粉末的样品放入模具中, 使用 ZYP-400 kN 压样机以 0.5 t 的压力对其进行压制持续 1 min, 使样品材料在钢模中挤压成型促进反应物粒子的扩散; 将压制成型后的原料转移至氧化铝坩埚中, 将坩埚置于马弗炉 (天津泰斯特仪器有限公司, SX2-10-12TP) 中, 在空气氛围条件下调整至 5 °C/min 的速度加热至泰曼温度, 保持 10 h 进行固态化学反应, 经过高温烧结过程形成一个连贯的固体结构. 烧结完成后, 样品降温至室温, 获得 $\Phi 5 \times 1.8$ mm 具有一定硬度的 NaCl:Cu 圆形剂量片样品, 将剂量片使用塑料薄膜密封装入四元件外壳载体中, 载体可使剂量片在接受辐照时保持密封状态, 并能够匹配 InLight 200 型光释光自动测量系统的读取功能.

用西门子 D500 型全自动 X 射线衍射仪测试样品的 X 射线衍射 (X-ray diffraction, XRD) 图样; 用捷克 TESCAN VEGA 3SBU 型扫描电子显微镜 (Scanning electron microscope, SEM) 测试烧结后剂量片样品的表面形貌; 在样品每次辐照之前, 使用光退火仪对样品强光照 15 min, 以排空剂量片内可能残留的辐照剂量; 使用美国 LAND-AUER 公司生产的 InLight 200 型光释光自动测量系统 (光释光测量系统), 采用脉冲式光激发光 (Pulsed optically stimulated luminescence, POSL) 的测量模式对剂量片进行光释光读数, 激发光源中心波长设置为 350 nm, 每次脉冲激发时间设置为

10 ms. 剂量片样品的光释光测试均在常温、避光及密封的条件下进行.

3 实验结果

3.1 X 射线衍射分析

氯化钠的熔点是 801 °C, 氯化亚铜的熔点是 426 °C, 实验中选取测试的烧结温度为 400 °C, 650 °C. 首先将两种温度下烧结的样品分别研磨为粉末, 然后对两种样品做 XRD 分析. 烧结温度为 400 °C 时, 样品发生多元系固相烧结, 异组元之间互溶形成固溶体; 烧结温度为 650 °C 时, 样品内部发生液相烧结, 氯化亚铜熔化, 烧结加速 Cu^+ 离子和空位扩散以及颗粒重排和粘性塑性流动, 烧结晶粒生长进行二次再结晶. Cu^+ 的半径 (0.077 nm) 小于 Na^+ 的半径 (0.102 nm), Cu^+ 掺杂进 NaCl 的晶格中引起 NaCl 晶体中晶格的轻微扭曲, 峰强度高于纯 NaCl 晶体, 表明烧结后结晶性及强度提升. 由图 1 可知, NaCl:Cu 经过 650 °C 与 400 °C 烧结后均在 27°, 32°, 45°, 56°, 66°, 75°, 84° 出现 XRD 特征峰, 与纯 NaCl 晶体的 XRD 标准卡片 (PDF-#88-2300) 对比, 650 °C 烧结的样品与标准卡吻合程度更高, 因此后续测量实验中使用 650 °C 烧结的样品.

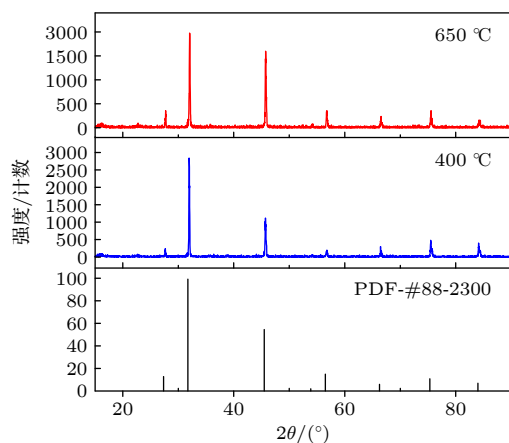


图 1 不同烧结温度的 NaCl:Cu(2 h, 0.5%) 粉末的 XRD 图样

Fig. 1. XRD patterns of NaCl: Cu (2 h, 0.5%) powder at different sintering temperatures.

3.2 表面形貌

图 2(a) 是将烧结温度为 650 °C 的块状 NaCl:Cu 样品放大 880 倍的 SEM 图像, 此时电子枪的

电压设置为 15 kV. 由图 2(a) 可以看出, NaCl:Cu 剂量片整体呈焊接状紧密连接在一起, 表明烧结过程中特征晶粒的焊接效果良好, 粒子结合成一个连贯的固体结构. 图 2(b) 是将烧结温度为 650 °C 的块状 NaCl:Cu 研磨为粉末后放大 38800 倍的 SEM 图像, 此时电子枪电压设置为 30 kV, 可以看到 NaCl:Cu 的晶粒.

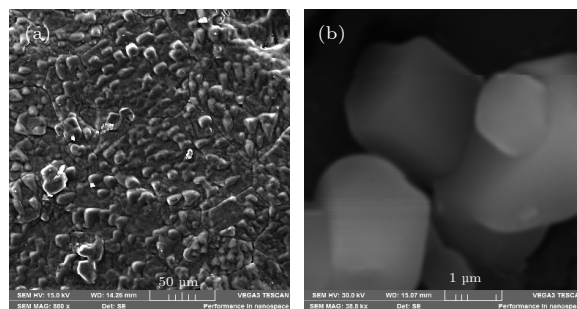


图 2 (a) 15 kV 高压, 放大 880 倍条件下 NaCl:Cu 样品的 SEM 图像; (b) 30 kV 高压, 放大 38800 倍条件下 NaCl:Cu 样品的 SEM 图像

Fig. 2. (a) SEM image of NaCl: Cu sample under 15 kV high voltage and 880 magnification; (b) SEM image of NaCl: Cu sample at 30 kV high voltage and 38800 magnification.

3.3 NaCl:Cu 剂量片的光释光特性

3.3.1 粒径与剂量响应分布稳定性

为了研究过筛过程对于制作 NaCl:Cu 剂量片样品光释光剂量响应分布稳定性的影响, 将 NaCl 及 CuCl 粉末通过玛瑙研钵混合研磨后, 未经过过筛及经过过筛 (100 目) 制作的剂量片样品各制备 20 组, 使用 FJ417 型热释光照射器的 γ 源对样品辐照 5 mGy, 再使用光释光测量系统采用 POSL 模式激发 50 次, 将测得的光释光强度值求和, 得到光释光剂量响应, 测量结果分别如图 3(a) 和 (b).

变异系数是反应数据离散程度的绝对值. 变异系数相关计算公式如下:

$$CV = \frac{\sigma}{\bar{X}}, \quad (1)$$

$$\sigma = \sqrt{S^2}, \quad (2)$$

$$S^2 = \frac{1}{n} \left(\sum_{i=1}^n [\bar{X} - X_i]^2 \right), \quad (3)$$

式中, CV 为变异系数, σ 为标准差, \bar{X} 为平均值, S 为方差, X_i 为实际测量值. 未过筛的样品光释光响应最大值 149127, 最小值 5930, 平均值 $\bar{X} = 35159$,

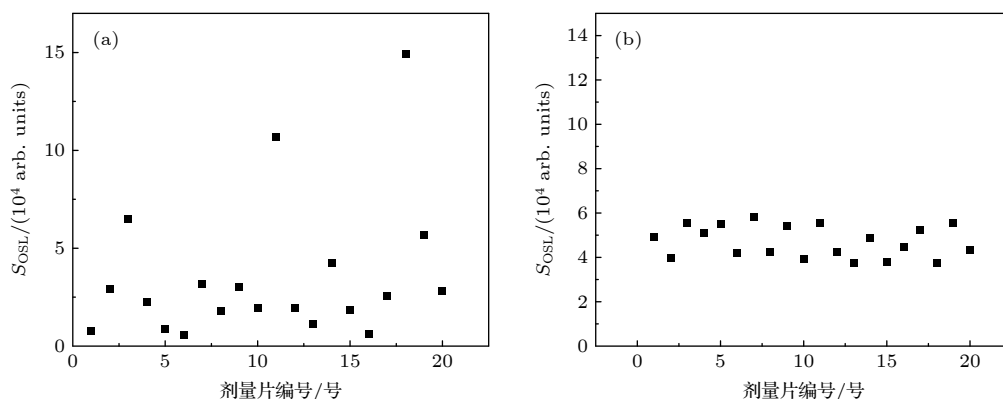


图 3 (a) 未过筛 NaCl:Cu 粉末烧结的剂量片光释光响应; (b) 100 目过筛 NaCl:Cu 粉末烧结的剂量片光释光响应

Fig. 3. (a) The OSL response of sintered dose tablets of unfiltered NaCl: Cu powder; (b) OSL response of sintered dose tablets of 100 mesh screened NaCl: Cu powder.

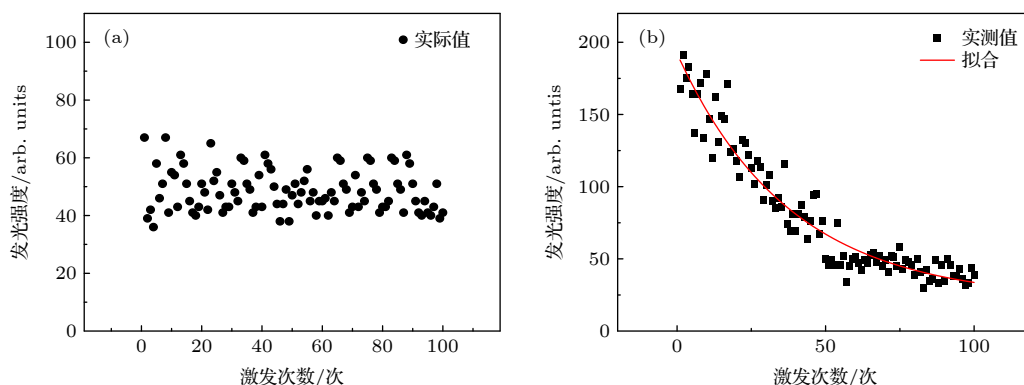


图 4 (a) NaCl:Cu 剂量片光释光本底测试; (b) NaCl:Cu 剂量片光释光衰退特性测试

Fig. 4. (a) OSL background test of NaCl: Cu dose tablets; (b) measurement of OSL decay characteristics of NaCl: Cu dose tablets.

标准差 $\sigma = 36000$, 变异系数 $CV = 1.02392$, 部分偏离较大的值可达到 100000 与 150000; 过筛的样品光释光响应最大值 58372, 最小值 37665, 均值为 $\bar{X} = 47202$, 标准差 $\sigma = 7149$, 变异系数 $CV = 0.15146$.

根据图 3(a) 和 (b) 及数据的对比可以看出, 相同辐照条件下, 过筛后的 NaCl:Cu 粉末粒径普遍较小且均匀度提高, 较未过筛的样品光释光响应分布区间小, 平均响应值高, 标准差小, 变异系数小. 压片过程中, 样品颗粒粒径降低可以提高 NaCl 与 CuCl 接触的表面积, 增强反应物粒子的扩散效果; 在高温烧结过程中, 接触表面积增大可提高 Cu^+ 离子扩散及传递效率, 增加晶体内剂量陷阱的数量, 使得整体的光释光响应测量值较高, 当颗粒粒径更加均匀时, 不同剂量片的 Cu^+ 离子传递效率及数量较为接近, 产生剂量陷阱的数量差距减小, 光释光灵敏性更接近, 其他实验中使用的均为过筛 100 目后制作的样品.

3.3.2 衰退特性

在剂量响应的测量中本底信号会对测量结果产生影响, 实验室限制空气比释动能率小于 $0.5 \mu\text{Gy/h}$, 将 NaCl:Cu 剂量元件光退火 15 min 清空残余信号后, 测试系统本底引起的光释光发光强度, 测试结果如图 4(a) 中所示, 平均值 $\bar{X} = 48$. 将经过光退火的 NaCl:Cu 剂量片辐照 1 mGy 后, 在 POSL 模式下激发 100 次, 测量结果如图 4(b). 可以看出 NaCl:Cu 剂量片具有良好的光释光特性, 且呈现典型的指数衰减, 根据恒定光源激发的简化模型, 光释光的强度可以表示为

$$Z = X \times \exp[-t/m] + Y \times \exp[-t/n]. \quad (4)$$

运用 (4) 式对逐渐衰减的光释光强度进行指数拟合, 曲线由快衰减和慢衰减两部分组成, 图 4(b) 中的红色曲线为拟合曲线, 公式中 Z 为光释光的总强度, 与剂量陷阱相关的快速衰减部分起始强度 $X = 21.46$, 快衰减常数 $m = 1.29$; 与浅陷阱、深陷

阱相关的慢速衰减部分起始强度 $Y = 170.75$, 慢衰减常数 $n = 37.9$. 这样的衰变速率可在时间上保证光释光的检测和利用, 且在激发 50 次后达到与本底相同的光释光强度, 因此在其他测量中选择记录光释光强度的激发次数为 50 次.

3.3.3 能量响应特性

图 5 是 NaCl:Cu 剂量片样品经不同能量的 γ 射线及 X 射线分别辐照后的光释光强度曲线, γ 射线源为 Cs-137 源 (662 keV)、Co-60 源 (1.173 MeV 和 1.332 MeV)、Am-241 源 (59.5 keV) 仪表源, X 射线源为 N-80 (65 keV), N-300 (250 keV) 仪表源, 均由原子高科股份有限公司生产, 对样品的辐照剂量均为 3 mGy, 静置 24 h 后使用光释光测量系统在 POSL 模式下激发 50 次得到测量结果. 图 5 可以看出, 对于 X 射线 (或 γ 射线), 当辐照剂量相同时, NaCl:Cu 剂量片对于能量较低射线的光释光响应高于能量较高的射线. 辐照剂量相同条件下的同种射线, 当其能量较强, 穿透 NaCl:Cu 剂量片的能力较强, 被剂量片捕获的能量较低, 被射线激发的由价带跃迁至导带的电子数量较小, 导带中电子浓度低则浅陷阱及剂量陷阱捕获的电子数量较少, 从而剂量片的光释光强度低. 在使用 NaCl:Cu 剂量片计算光释光累计剂量时, 需考虑辐射现场辐射源的射线类别及射线的能量.

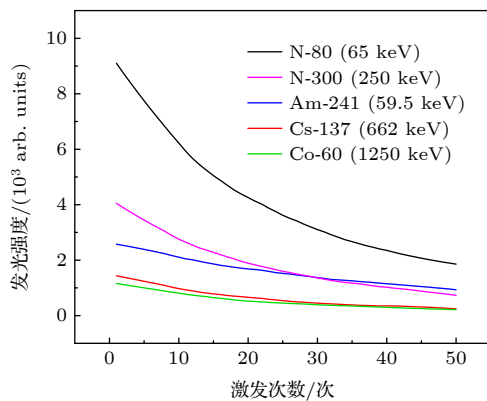


图 5 NaCl:Cu 剂量片光释光能量响应测试

Fig. 5. Measurement of OSL energy response of NaCl: Cu dose tablets.

3.3.4 重复特性

选择 4 组没有辐照历史的 NaCl:Cu 剂量片进行重复性测量实验, 辐照源为 Cs-137, 每次测量的辐照剂量均为 3 mGy, 采用 POSL 模式激发 50 次, 将测得的光释光强度测量值求和后得到光释光响

应, 实验中每测量完成一次均通过光退火仪退火 15 min, 重复测量 5 次, 光释光响应的实验结果如表 1 所示.

表 1 重复性实验测量数据

Table 1. Measurement data of repeatability experiment.

测量次数	1组响应	2组响应	3组响应	4组响应	平均响应
1	19145	17132	15397	17269	17235.75
2	18667	15736	17354	19041	17699.5
3	16395	18879	17437	18975	17921.5
4	17576	18664	17485	18531	18064
5	18111	18978	19009	17802	18475

经计算, 重复性测试实验测量结果平均值 $\bar{x} = 17879.15$, 标准差为 $\sigma = 409.2$, 变异系数 $CV = 2.28\%$, 该剂量元件的稳定性达到了对于热释光剂量计变异系数小于 5% 的要求^[15]. 光释光利用了光激发的性质, 不需要对剂量片加热退火, 在测量及光退火过程中不会改变材料的晶格结构及晶格缺陷, 因此重复测得的结果一致性较好.

3.3.5 角度响应特性

根据所需不同的偏转角度响应程度, 用剂量计和水箱模拟真实被辐照过程, 在角度刻度盘上整体偏转相应角度进行实验. 图 6 为 NaCl:Cu 剂量片角度响应测试图, 用于探究射线方向与剂量片平面中心法线偏转角度不同时, 的光释光响应特性. 入射角度为 0° 表示射线方向与剂量片平面垂直, 其他偏转角度为射线方向与剂量片平面法线相交的角度. 将 NaCl:Cu 剂量计光退火处理后, 自 0° — 90° 范围内以 15° 为角度间隔依次设置剂量片进行辐照, 剂量计偏转角由角度刻度盘调节, 放射源为 Cs-137 标准源, 辐照剂量率为 $13.44 \mu\text{Gy/s}$, 辐照剂量为 3 mGy, 辐照完毕静置 24 h 进行测读. 图 6 中, 横轴为偏转角度, 纵轴为测量值与标准值之比所得到的角度响应因子, 用于对照的标准值 32893 arb. units (3 mGy) 在下 3.3.6 节得出. 在 0° — 90° 的偏转角度范围内, 剂量元件相对角度响应因子范围为 0.86—0.994; 当偏转角度为 90° 时, 测量值与标准值差距最大, 为 13.5%. 测量过程中, 辐照角度的改变必然会改变 γ 射线辐照剂量片的表面积, 随着剂量片偏转角度增大, 其被 γ 射线照射的面积减小, 内部各晶格对于 γ 射线的响应略有减小.

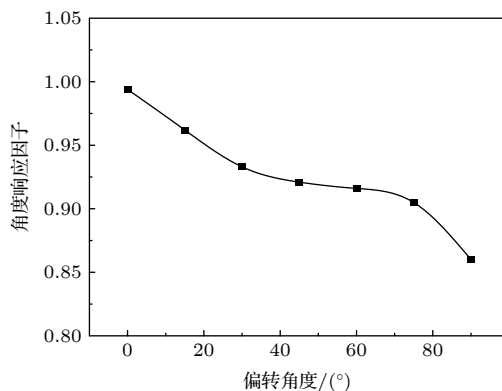


图6 剂量元件角度响应

Fig. 6. Angular response of dose element.

3.3.6 剂量响应特性

对 NaCl:Cu 剂量片和 NaCl 剂量片, 分别辐照不同剂量后采用脉冲激发 50 次测得的光释光强度测量值求和后得到光释光剂量响应. NaCl 剂量片采用了与 NaCl:Cu 剂量片相同的制作工艺, 图 7 是经光退火处理后, NaCl:Cu 剂量片和 NaCl 剂量片在 1—1000 mGy 剂量范围的光释光响应, 使用原子高科股份有限公司生产的 Cs-137 标准源. 图 7 中横坐标 x 为辐照的剂量值, 单位为 mGy, 纵坐标 y 为光释光响应, NaCl:Cu 剂量片的线性拟合度 $R^2 = 0.991$, NaCl 剂量片的线性拟合度 $R^2 = 0.985$. 从图 7 可以看出, 光释光剂量响应曲线 NaCl:Cu 剂量片和 NaCl 剂量片具有良好的光释光线性关系, 随着辐照剂量的增加, 光释光的发光强度呈线性增强, 线性拟合度较高, 在辐照剂量范围内未达到饱和值; 当两者辐照剂量相同时, 掺杂后的剂量片样品是纯 NaCl 剂量片样品光释光响应的 2—4 倍.

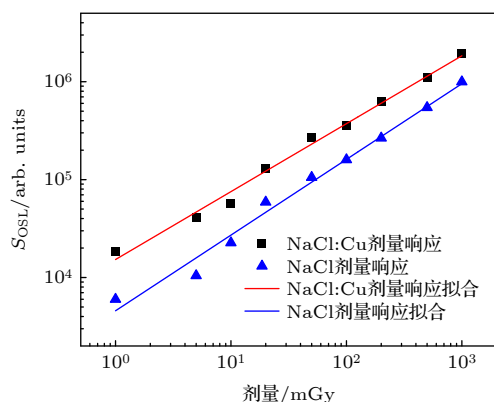


图7 NaCl:Cu 剂量片及 NaCl 剂量片光释光剂量线性响应

Fig. 7. Linear response of OSL dose of NaCl: Cu dose tablets and NaCl dose tablets.

4 结 论

本文采用生产方法简单、成本低的烧结法成功制备了具有优良光释光特性的 NaCl:Cu 剂量片, 发现其在相同剂量下对于不同能量的同类射线具有不同光释光响应的特点. 压片前材料的粒径均匀度对剂量片光释光响应分布一致性具有非常大的影响. 在 1—1000 mGy 剂量范围内具有良好的光释光线性关系, 比未掺杂的纯氯化钠光释光响应高 2—4 倍. 光释光衰减曲线具有典型的指数衰减特性, 偏转角度对测量值影响最大为 13.5%. 通过烧结法制备的 NaCl: Cu 剂量片很适合作为个人或环境剂量监测用剂量计.

参考文献

- [1] Zhang C X, Lin L B, Liang B L, Tang Q, Li D H, Luo D L 2004 *Acta Phys. Sin.* **01** 291 (in Chinese) [张纯祥, 林理彬, 梁宝臻, 唐强, 李德卉, 罗达玲 2004 *物理学报* **01** 291]
- [2] Yang X B, Li H J, Cheng Y, Su L B, Tang Q 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 7900 (in Chinese) [杨新波, 李红军, 徐军, 程艳, 苏良碧, 唐强 2008 *物理学报* **57** 7900]
- [3] Hu K Y, Li H J, Xu J, Yang Q H, Su L B, Tang Q 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 482 (in Chinese) [胡克艳, 李红军, 徐军, 杨秋红, 苏良碧, 唐强 2012 *物理学报* **61** 482]
- [4] Wu L, Wang Q, Li G D, Dou Q Y, Ji X 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 306 (in Chinese) [吴丽, 王倩, 李国栋, 窦巧娜, 吉旭 2016 *物理学报* **65** 306]
- [5] Elashmawy M, 2018 *Nucl. Instrum. Meth. B.* **423** 49
- [6] Hernández J A, Camarillo E G, Muñoz G, Flores C J, Cabrera E B, Jaque F, Romero J J, García S J, Murrieta H S 2001 *Opt. Mater.* **17** 491
- [7] Cruz-Zaragoza E, Barboza-Flores M, Chernov V, Meléndrez R, Ramos B S, Negrón-Mendoza A, Hernández J M, Murrieta H 2006 *Radiat. Prot. Dosim.* **119** 102
- [8] Cruz-Zaragoza E, Ortiz A, Furetta C, Flores J C, Hernández A J, Murrieta S H 2011 *Appl. Radiat. Isot.* **69** 334
- [9] Bhujbal P M, Dhoble S J 2012 *J. Biomed. Mater. Res. B* **100** 2148
- [10] Nagaoka Y, Adachi S 2014 *J. Lumin.* **145** 797
- [11] Bernal R, Cruz-Vázquez C, Brown F, Tostado-García W, Pérez-Salas R, Castaño V M 2014 *Electron. Mater. Lett.* **10** 863
- [12] Gaikwad S U, Patil R R, Kulkarni M S, Bhatt B C, Moharil S V 2016 *Am. J. Phys.* **84** 020510
- [13] Gaikwad S U, Patil R R, Kulkarni M S, Dudhe C M, Moharil S V 2020 *Radiat. Prot. Dosim.* **192** 1
- [14] McKeever S W S 1985 *Nucl. Instrum. Meth. A.* **241** 620
- [15] Li Y F, Chen J X, Zhou Y C 2003 *Verification Regulation of X/γ-ray Thermoluminescence Dosimeter for Personal and Environmental Monitoring* (Beijing: China Quality Inspection press) p12 (in Chinese) [李燕飞, 陈建新, 周迎春 2006 个人与环境监测用 X, γ 辐射热释光剂量测量装置检定规程 (北京: 中国质检出版社) 第12页]
- [16] Guo Z J, Wang C, Zeng J Z 2014 *Thermoluminescence*

- Dosimetry System for Personal and Environmental Monitoring* (Beijing: China Standards Press) p21 (in Chinese) [郭志军, 王川, 曾进忠 2014 个人和环境监测用热释光剂量测量系统 (北京: 中国标准出版社) 第21页]
- [17] Krishnakumar D N, Perumal R N 2020 *J. Mater. Sci-mater. El.* **5** 4294
- [18] Han B, Feng T D, Chen W, Li D H, Wu D, Shou J X 2017 *Nucl. Electron. Detect. Technol.* **37** 1253 (in Chinese) [韩斌, 冯天成, 陈伟, 李德红, 吴迪, 寿金翔 2017 核电子学与探测技术 **37** 1253]
- [19] Zhao X L, Chen B, He S Y, Liu L Y, Su N, He S J 2018 *Nucl. Electron. Detect. Technol.* **38** 521 (in Chinese) [赵修良, 陈斌, 何淑雅, 刘丽艳, 孙娜, 贺三军 2018 核电子学与探测技术 **38** 521]
- [20] Mehrabi M, Zahedifar M, Saeidi-Sogh Z, Ramazani-Moghaddam-Arani A, Sadeghi E, Harooni S 2017 *Nucl. Instrum. Meth. A* **846** 87

Photoluminescence characteristics of NaCl: Cu sintered dose tablets under X/ γ irradiation*

Li Zhe-Xu¹⁾ Li Xin-Huan²⁾ He San-Jun¹⁾ Zhou Zhi-Qian³⁾ Liu Li-Yan¹⁾
Yu Wan-Tang¹⁾ Zhao Xiu-Liang^{1)†}

¹⁾ (School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang 421001, China)

²⁾ (School of Civil and Traffic Engineering, Qinghai Minzu University, Xi'ning 810007, China)

³⁾ (Department of Oncology, Yichang First People's Hospital, Yichang 443099, China)

(Received 4 January 2022; revised manuscript received 9 February 2022)

Abstract

In this paper, NaCl: Cu circular dose tablets with a size of 5×1.8mm are prepared by sintering pure NaCl and CuCl powder as raw materials. They are placed in a four-element shell and sealed with plastic film to overcome the moisture absorption of the material. Their photoluminescence characteristics are studied by using an Inlight 200 automatic photoluminescence measurement system. The results show that the X-ray characteristic peaks of NaCl: Cu sintered at 650 °C and 400 °C appear at 27°, 32°, 45°, 56°, 66°, 75° and 84° respectively. Compared with the data given by XRD standard card of pure NaCl crystal (pdf-#88-2300), those peaks of the sample sintered at 650 °C are more consistent with the data given by the standard card. In the scanning electron microscope image, it can be seen that the grains are wholly welded and closely connected, and the characteristic grains in the sintering process have good welding effect. After Cu⁺ ion doping, the lattice structure of NaCl is slightly deformed. After high-temperature sintering, the mass transfer of Cu⁺ ions occurs at an atomic level in NaCl, and the particles are combined into a coherent solid structure. For X/ γ -rays, the photoluminescence response of NaCl:Cu dose sheet to low-energy rays is higher than that of the same kind of rays with high energy. When using NaCl:Cu dose sheet to calculate the cumulative photoluminescence dose, it is necessary to consider the ray category and ray energy of the radiation source at the radiation site. The photoluminescence curve of NaCl:Cu dose sheet has typical exponential attenuation characteristics. The deflection angle of dose sheet has influence on the measured value: the greatest influence extent is 13.5%. With the increase of deflection angle of dose sheet, the area irradiated by γ -ray decreases, and the response of internal lattices to γ -ray decreases slightly. The uniformity of NaCl: Cu raw material particle sizes has a great influence on the distribution consistency of photoluminescence response of dose tablets. The decrease of sample particle size during tablet pressing can improve the contact surface area between NaCl and CuCl. The increase of

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No.12005098), the Scientific Research Project of Hunan Provincial Department of Education (Grant No.19A431), and the Graduate Scientific Research Innovation Project of Hunan Provincial Department of Education (Grant No.CX20210945).

† Corresponding author. E-mail: zhaoxiul@163.com

contact surface area can improve the diffusion and transfer efficiency of Cu^+ ions, increase the number of dose traps in the crystal, and make the overall count higher. When the particle sizes are more uniform, the Cu^+ ion transfer efficiencies and quantities of different dose tablets are close, the difference in the number of dose traps is reduced, and the photoluminescence sensitivities are closer. The coefficient of variation of the repeatability test experiment is 2.28%. The consistency of the repeated measurement data is good. The lattice structure and lattice defects of the material are not changed in the process of photoluminescence measurement and photoannealing. In a dose range of 1-1000mgy, with the increase of irradiation dose, the photoluminescence response of NaCl: Cu and NaCl dose tablets gradually increase and show a good linear relationship. The photoluminescence response of NaCl: Cu is 2-to-4 times higher than that of NaCl dose tablets. The NaCl: Cu dose tablets prepared by the sintering method can be used as dosimeters for monitoring personal or environmental dose.

Keywords: NaCl:Cu, optically stimulated luminescent, sintering method, linear relationship

PACS: 78.60.Lc, 76.30.Mi

DOI: [10.7498/aps.71.20220014](https://doi.org/10.7498/aps.71.20220014)