

热释光辐射剂量测量

余荫铠¹, 赖睿然²

¹ 中山大学物理学院, 广州 510275, 邮箱: yuyk6@mail2.sysu.edu.cn

² 中山大学物理学院, 广州 510275

实验信息

实验时间: 2022 年 10 月 19 日星期三下午、2022 年 10 月 26 日星期三下午

实验地点: 物理楼 301

实验人: 余荫铠、赖睿然

指导老师: 唐强

实验器材: 热释光测量仪 (SL08); 氟化锂 (LiF) 剂量计; 辐照器 (FJ417: ^{137}Cs 源, 照射功率为 0.546 Sv/min, 标定时间 2020 年 1 月)

1 原理

物质受到电离辐射等作用后, 将辐射能量储存于陷阱中。当加热时, 陷阱中的能量便以光的形式释放出来, 这种现象称为热释发光。

磷光体的发光机制可以用固体的能带理论解释。假设磷光体内只存在一种陷阱, 并且忽略电子的多次俘获, 则热释光的强度 I 为:

$$I = nS \exp\left(-\frac{\varepsilon}{kT}\right) \quad (1)$$

其中, S 为一个常数, n 为能级 ε 上的电子数。

因此, 可以通过对热释光的测量, 来间接测量物质所受到的辐射剂量。

在实验中, 我们通常通过测量剂量片的发光曲线来研究热释光强度。热释光的强度与加热温度的关系曲线叫做发光曲线。晶体受热时, 电子首先由较浅的陷阱中释放出来, 当这些陷阱中储存的电子全部释放完时, 光强度减小, 形成图中的第一个峰。随着加热温度的增高, 较深的陷阱中的电子被释放, 又形成了图中的其它的峰。

发光曲线下的面积叫做发光总额。同一种磷光体, 若接受的照射量一定, 则发光总额是一个常数。因此, 原则上可以用任何一个峰的积分强度确定剂量。另外, 剂量也可以与峰的高度相联系。所以, 测量发光强度一般有两种方法: 峰高法与光和法。

热释光测量仪的基本工作原理是: 经辐照后的待测元件由仪器内的电热片或热气等加热, 待测元件加热后所发出的光, 通过光学系统滤光、反射、聚焦后, 通过光倍增值管转换成电信号。输出显示可用率表指示出发光峰的高度 (峰高法) 或以数字显示出电荷积分值 (光和法), 最后再换算出待测元件所接收到的照射量。

这样的输出热释光-辐射响应显然与具体的仪器参数、测量条件有关, 为了在实验中得到有效的信息, 我们需要对测量仪、剂量片的特性进行定量的标定, 称为剂量学特性。

中山大学近代物理实验 (2022)

报告归属人
余荫铠

学号
20343078

通讯邮箱
yuyk6@mail2.sysu.edu.cn

个人主页
www.yykspc.com

© 余荫铠 2022.
本报告除了用作本人近代物理实验作业外, 在其他场合放弃一切版权, 可以随意转载、引用、借鉴, 无需征求本人意见。转载、引用、借鉴引起的后果, 不由本人承担。

我们举几个比较重要的剂量学特性，本次实验中我们对其进行测量。

灵敏度：指单位照射量的热释光响应。与元件热释光材料性质和含量、激活剂种类、射线能量和入射方向、热处理条件等有关。一般原子序数较高的元件，灵敏度较高。

衰退：热释光会自行减弱。衰退的快慢与磷光体种类、环境温度、光照等因素有关。

本底：通常将未经人为辐照的元件的测量值统称为本底（或“假荧光”）。它包括元件表面与空气中水气或有机杂质接触产生的化学热释光和摩擦产生的摩擦热释光。它与材料的种类和使用条件有关，因此，必须注意保持元件和加热盘的清洁。在低剂量测量时更要设法予以减少或扣除。

2 实验，以及实验的故事

本次实验的最终目的，是要标定未知辐射源的剂量率（[2.4小节](#)），并且测量特定待测剂量片中的辐射剂量（[2.6小节](#)）。这两个结果不依赖于具体的测量仪参数和剂量片特性。

在实验中，我们用剂量片在测量仪中的热释光强度来表征辐射剂量。这就要求我们要先测量剂量片的热释光灵敏度（[2.5小节](#)），即单位辐射剂量引起的热释光强度。在[2.5小节](#)中我们通过测量热释光对辐射剂量的响应曲线来拟合灵敏度。

其中，热释光强度可以用峰高法或者光合法从剂量片的发光曲线求出，为保证发光曲线有较高的信噪比，我们需要先确定测量仪的合理工作条件（[2.1小节](#)、[2.2小节](#)），并且评估我们实验所用的测量条件下的测量稳定性（[2.3小节](#)）。

以上，就是我们进行本次实验的思路，覆盖了实验讲义要求的实验内容，同时我们理清了做实验的理由和脉络。下面我们据此开展实验。实验结果以图表的形式展现，而原始实验数据由于数据量过于庞大，且需编程分析，不便在报告中列出，我们将原始数据、数据处理 MATLAB 程序完整附于本报告的补充材料中，补充资料的访问链接见文末。

2.1 不同工作电压的 PMT 坪曲线

测量仪中光电倍增管的特性与所加电压有关，因此我们测量不同电压下的发光曲线，如图1的内插图所示。

根据发光曲线，我们可以直接用发光曲线的峰值作为热释光强度（峰高法）。同时，使用数值积分的梯形积分公式，可以计算出发光曲线下方的面积（光合法），也可以作为热释光强度。我们用两种方法计算出热释光强度随光电倍增管（PMT）工作电压的变化关系，示于图1中。需注意的是，由于在实验中我们发现本底荧光很小（如图1的内插图所示，本底为峰高的万分之一量级），因此上述计算并没有进行去除本底操作。

观察图1，发现 PMT 工作电压对发光曲线的峰值位置影响不大，而对曲线的峰值、面积有很大的影响，在测量范围（600V-900V）内，电压越大，热释光强度越高。最终，我们选择信噪比较高的 900V 电压作为后续实验的工作电压。

图1给出的另一重要结论是，峰高法与光合法几乎以完全相同的趋势刻画了热释光强度随 PMT 工作电压的变化。

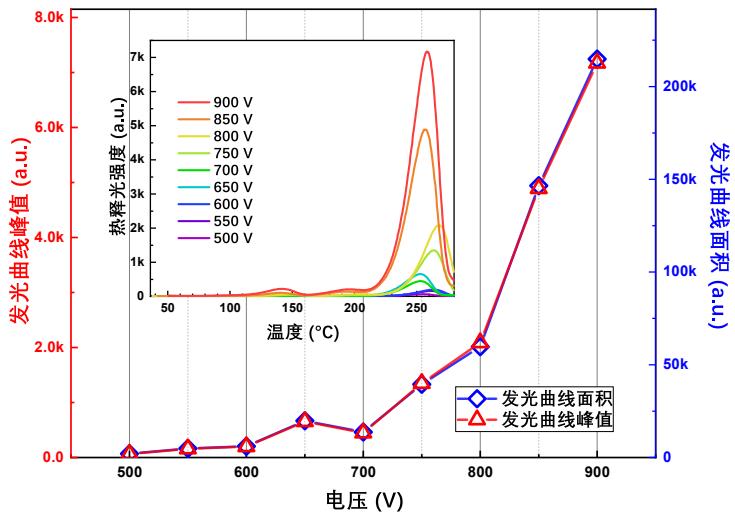


图1. 热释光响应随PMT工作电压的变化. (内插图: 不同工作电压下的发光曲线. 升温速率取 $5^{\circ}\text{C}/\text{s}$.)

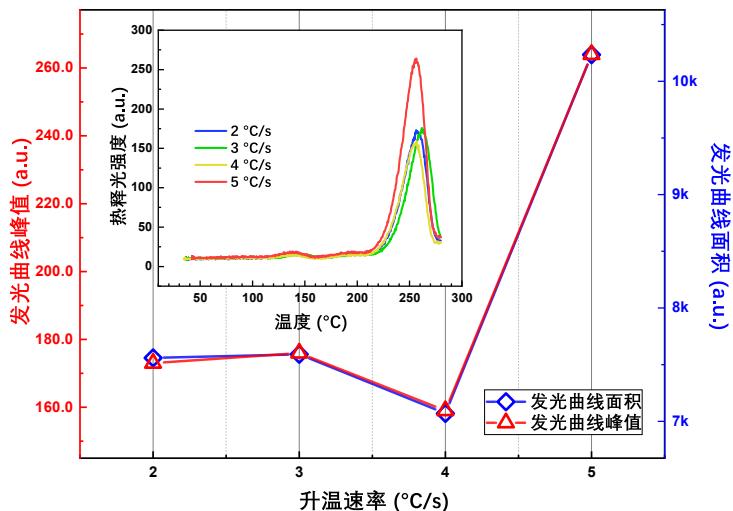


图2. 热释光响应随PMT工作电压的变化. (内插图: 不同工作电压下的发光曲线. 电压取900V.)

2.2 不同升温速率的热释光曲线

相关研究^[1]表明，剂量片的升温速率可能对其发光曲线影响较大。

与上一小节类似，我们测量了不同升温速率下的发光曲线，如图2的内插图所示。并且我们根据两种方法计算出热释光强度随升温速率的变化关系，亦如图2所示。

同样，通过图2我们发现，发光曲线的峰值位置受升温速率的影响不大，而升温速率对热释光强度有显著影响。大致地，在测量范围($2^{\circ}\text{C}/\text{s}-5^{\circ}\text{C}/\text{s}$)内，热释光强度随升温速率的增大而增大。

一个重要的结论是，图2中峰高法与光合法几乎以完全相同的趋势刻画了热释光强度随剂量片升温速率的变化。

还有一个规律，图1、图2显示热释光强度关于电压、升温速率的变化趋势都是非线性的，此亦为^[1]的工作所验证，不过在这里并不是我们关心的问题。在后续实验中，选

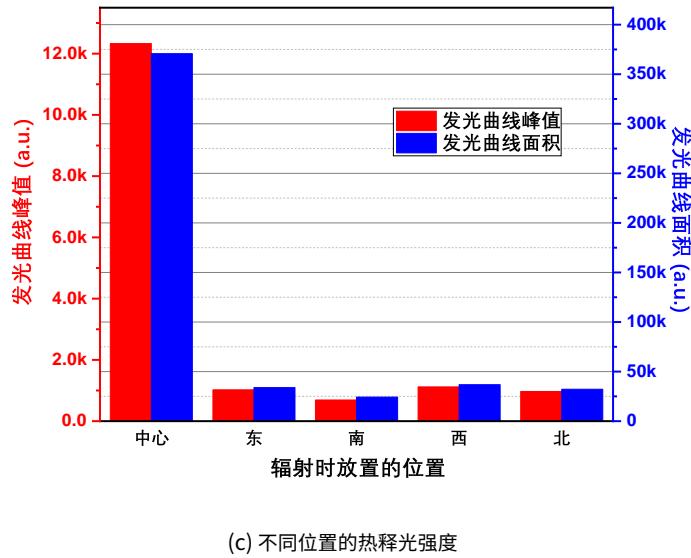
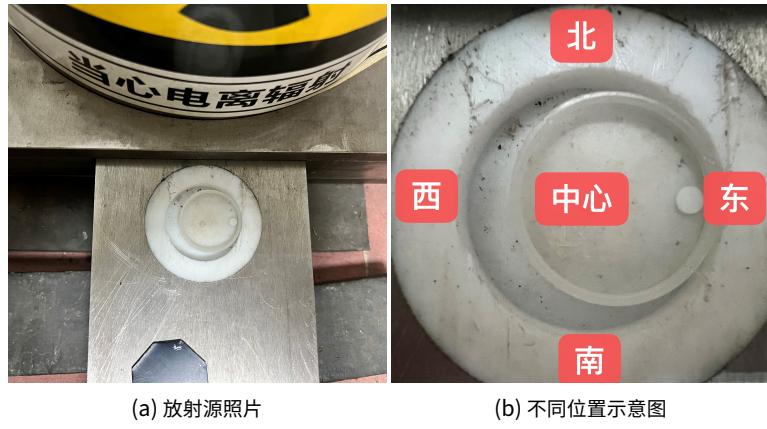


图 3. 不同位置的辐射剂量

用信噪比较高的 $5^{\circ}\text{C}/\text{s}$ 作为升温速率。

2.3 热释光稳定性

我们需探究，剂量片的热释光特性是否能够忠实反映辐射源的辐射特性。

经过预实验，我们发现将剂量片放在辐射源托盘的不同位置，辐射相同时间后，其热释光强度会有很大的差异，如图3所示。

如图3a，正对辐射源，可以标记图3b的五个位置（此处的“东南西北”不是指地理绝对方向，只是一个方便表述的标记），将同一个剂量片放在这几个特殊位置上，使用辐射源#1照射30s，其热释光响应如图3c。

图3c表示，中心位置所受的辐射剂量（其实这种表述已经假定了辐射剂量正比于热释光强度，我们后面会验证这一点）远远高于边缘位置，为10倍以上。这说明辐射源对托盘各处辐射的强度有显著差别，或者是不同位置使得辐射射线对剂量片的入射方向发生改变，导致了这样的差异。

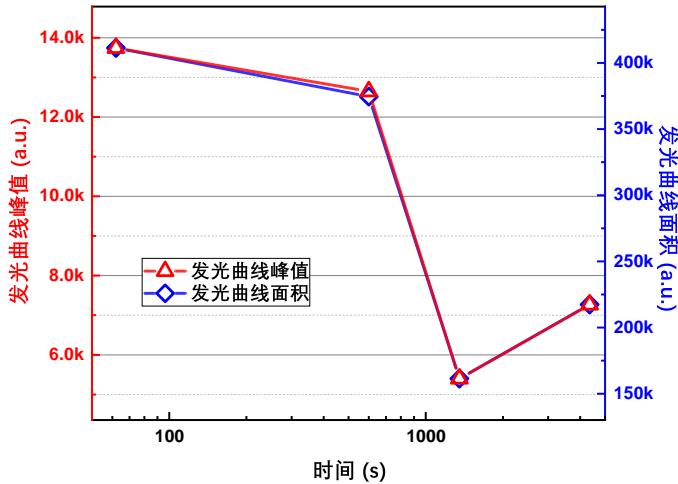


图4. 热释光响应的衰退曲线

这一步实验是在精确放置剂量片位置，以及小心而缓慢地将辐射源托盘推入辐射仓的前提下进行的。在其他的实验步骤中，很难做到这一点，这就使得即使其他测量条件都相同，而仅仅是放置的位置有差异，就给出了截然不同的结果。这使得我们的单次测量具有很大很大的偶然性。

由于我们并没有加入更多的放置位点来精确标记辐射场的分布，这里的稳定性分析只是定性的。

如果剂量片经过辐射源辐射后，不立即进行热释光测量，而是在实验室中放置一段时间，那么其中的辐射剂量会发生衰退。我们在图4中给出了热释光响应的衰退曲线，即同一剂量片经过相同剂量的辐射（这里的相同剂量是由同一辐射源辐射相同时间来保证的，但是由于我们前文所述的放置方位敏感性，这里的相同剂量其实很难保证）后，热释光强度关于经历的衰退时间的变化关系。

图4表示，大致地，经历的衰退时间越长，热释光强度越弱。衰退曲线中的每一个点我们只进行了单次测量，偶然性较高，但是还是能看出这个趋势的。

在实验中，我们尽量控制衰退时间不超过 100s，以保证测量结果不会将衰退时间的影响明显地表现出来而干扰测量结果的稳定性。

2.4 标定未知辐射源

在前述分析中，峰高法与光和法给出的变化趋势几乎完全一致，因此我们只使用其中之一就可以描述热释光强度了。后续都只用峰高法进行计算。

如果我们假定剂量片的热释光强度对辐射剂量的响应是线性的（第2.5将验证这一点），那么就可以用已知辐射源的剂量率来标定待测源的辐射率。同一剂量片，分别在不同的辐射源下经过相同时间的照射，其辐射剂量正比于辐射源的剂量率，同时也正比于热释光强度，也即发光曲线峰值。因此，发光曲线峰值于辐射源剂量率成正比。

表1. 用峰高法标定待测源的剂量率

辐射源	发光曲线峰值 (a.u.)	剂量率标定 (mSv/min)
已知源 FJ417 (^{137}Cs)	149	0.546 (2020年1月标定)
待测源 #1	5735	21.0
待测源 #2	22262	81.5

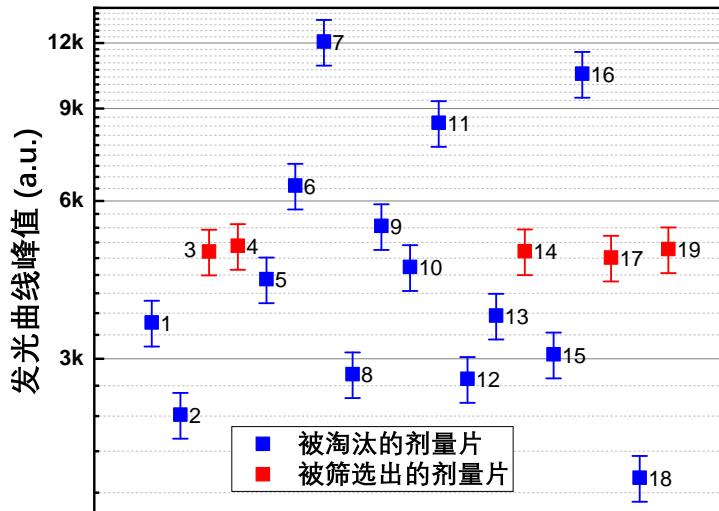


图5. 通过单次热释光响应测量粗筛选剂量片

我们测量了同一剂量片，分别在不同的辐射源下经过相同时间（这里是 60s）的照射后的发光曲线峰值，如表1所示。结合已知源的剂量率，就可以算出待测源的剂量率，记录于表1中。

这里相当于用剂量片在已知源下的单次测量结果来标记了剂量片的灵敏度（实际上，是剂量片于测量仪的共同的灵敏度），再用待测源的热释光强度除以灵敏度得到待测源的辐射剂量。

根据表??，未知源的标定结果是：待测源 #1 剂量率为 21.0 mSv/min；待测源 #2 剂量率为 81.5 mSv/min。

2.5 剂量片的响应曲线

要尽量准确且保证泛用地测量灵敏度，需要测量热释光强度关于辐射剂量的响应曲线。

显然，一个可行的方法是用同一剂量片，辐照不同的时间并测量其热释光强度。而我们则是用单次测量法粗筛选了五个灵敏度相近的剂量片，测量其响应曲线。这选用灵敏度相近的五个剂量片的意义在于，如果它们灵敏度的真值偏差小于各自的测量的不确定度，那么这五个剂量片就可以看作是同一个剂量片，它们的响应曲线不可区分。

图5展示了 19 个待筛选剂量片的结果，它们都在辐射源 #2 下照射了 10s，并在图中显示其热释光强度（用发光曲线峰值表示）。单次测量的不确定度由 B 类不确定度提供，图5展示误差棒是由人工计时考虑的 1s 偏差引起的 10% 的不确定度，但这仍只是一个保

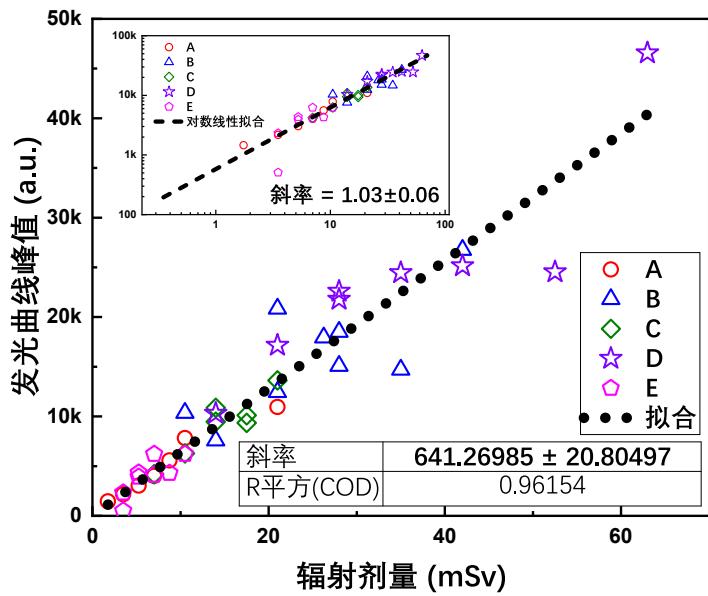


图6. 剂量片的响应曲线

守的区间，它并没有考虑我们在第2.3节所讨论的辐射时放置位置的偏差带来的巨大影响，因此实际上的不确定度范围肯定要更大一些。

我们只需要在不确定度允许的区间内选取灵敏度相近的剂量片，如图5所示，我们在19个剂量片中选取了编号为3、4、14、17、19的剂量片。这五个剂量片上交给了指导老师，在一周后发回，其编号自然无法区分，我们重新编号为A、B、C、D、E（并不是与之前的五个编号按序对应）。

我们测量了这五个剂量片的响应曲线，如图6所示。将五个剂量片的数据并置，作过原点的线性拟合，其斜率就表示灵敏度的统计值，为

$$\eta = (641 \pm 20) \text{ a.u./mSv} \quad (2)$$

关于图6，还需要做三点解释：为何将五组数据并置拟合？为何作过原点的线性拟合？横轴的辐射剂量值如何确定？

其一，并置拟合的优势在于，拟合结果由更多的数据点算出，降低了拟合误差，其代价是不同组数据的真值偏差会引入新的统计不确定度。当分别拟合得到的真值（用拟合值代替）偏差小于分别拟合得到的拟合误差（标准差）时，并置拟合是有统计意义的，更加充分地利用了原始数据。

其二，从原理出发，当辐射剂量不太大时，热释光强度对辐射剂量的响应是线性的，且不考虑本底热释光的情况下热释光强度正比于辐射剂量。我们需要处理的问题在于，如何判断测量数据处于线性响应区，这就是进行过原点的线性拟合的前提。图6的内插图展示了双对数坐标下的响应曲线散点及其并置线性拟合结果。可以看到双对数坐标下散点呈现很好的线性性，说明热释光强度关于辐射剂量存在标度律，而拟合斜率 1.03 ± 0.06 则说明该标度在相当小的误差允许的范围内可以看作线性的标度1。也就是说，测量数据处在线性响应区，可以使用线性拟合。还需要注意的是，线性拟合时需约束拟合直线

表2. 待测辐射剂量的测量结果

剂量片编号	发光曲线峰值 (a.u.)	辐射剂量 (mSv)
A	2441	3.81 ± 0.11
B	11739	18.31 ± 0.57
C	5894	9.19 ± 0.29
D	14739	22.98 ± 0.72
E	2669	4.16 ± 0.13

过原点，以保证统计误差完全体现在拟合斜率中，不至于被分配给了拟合截距而被偷偷舍去了。

其三，在实验中，我们控制的自变量是辐射时长，而在辐射时长长于辐射弛豫时间的情况下，可以认为辐射剂量正比于辐射时间，其系数就是剂量率。这里我们采用辐射源 #2 进行辐照，其剂量率在第2.4节的表1中测量为 21.0 mSv/min。将辐射时长乘以剂量率，就得到辐射剂量，作为响应曲线的横轴。

2.6 测量未知辐射剂量

未知辐射剂量来源于第一周实验选择前述 A、B、C、D、E 五个灵敏度相近的剂量片后，上交给指导老师，老师对剂量片进行特定剂量的辐照后再发回。我们在测量第2.5节的响应曲线之前，先测量了存留在剂量片中的辐射剂量。只不过处于分析逻辑上的连贯，我们把这一节放到最后来呈现。

我们用发光曲线的峰值来表征热释光强度，记为 I_{\max} ，五个剂量片的热释光强度记录在表2中。

辐射剂量 W 的计算表达式为

$$W = \eta I_{\max} \quad (3)$$

我们将计算结果也记录在了表2中，其中不确定度只考虑了灵敏度 η 的统计误差，而发光曲线峰值的测量误差我们总是忽略，它早已在标定其他测量量的过程中被分摊其中了。

3 进一步的讨论

以上，我们对各个具体步骤的实验思路、实验结果都进行了比较详尽的分析。在这一节，我们综合上述各个实验来进行总体的分析。

3.1 热释光强度测量方法的可靠性

回到我们最开始的实验目标，是要标定未知辐射源的剂量率并且测量特定待测剂量片中的辐射剂量。其中，我们用剂量片在测量仪中的热释光强度来表征辐射剂量。而在后续的计算中，我们都采用发光曲线的峰值来代表热释光强度，而且我们在计算发光曲线的峰值时没有去除本底。我们需要讨论这两个操作是否合理。

从原理上看，峰高法具有测速快、衰退影响小、本底荧光和热辐射本底干扰小等优点，但是因为峰的高度是加热速度的函数，所以加热速度和加热过程的重复性对测量带来的影响比较大；而光合法受升温速度和加热过程重复性的影响小，可以采用较高的升温速度，并可采用测量发光曲线中一部分面积的方法（窗户测量法）消除低温峰及噪声本底的影响，但主要缺点是受“假荧光”热释光本底及残余剂量干扰较大，所以在测量中必须选择合适的“测量”阶段和“退火”阶段的温度、合理地选择各阶段持续时间，以保证磷光体各个部分的温度达到平衡，以利于充分释放储存的辐射能量。

而在第2.1、2.2、2.3节的实验中我们发现两种方法的测量值几乎严格成正比。这就证明了我们的实验中做到了“测量”阶段温度足够高、升温速率稳定、“退火”阶段的温度的持续时间足够长、衰退时长足够长、本底足够小（这一点直接从数值上也可以看出）。因此，我们在测量中可以不考虑本底并且只使用发光曲线的峰值来代表热释光强度。

3.2 误差的不均匀分配

在最后，我们计算未知辐射剂量（第2.6）的不确定度时，关键在于 W 的因子灵敏度 η 的不确定度的贡献。而我们在第2.5节计算灵敏度 η 的不确定度时，只考虑了响应曲线的拟合误差（这一误差包含了每个数据点的 B 类不确定度的贡献，我们通过相当多次的测量把这一误差降得足够低，即使由于摆放位置敏感性每个数据是由很大的偶然性的），但是，我们处理横轴的变换时将辐射时长乘以剂量率得到辐射剂量，这是没有考虑误差的。所以事实上，我们忽略了这之中的剂量率的不确定度。而剂量率是在第2.4节的表1中以单次测量的形式来确定的，这其中也有相当大的 B 类不确定度（摆放位置敏感性引起），而且是我们没法直接量化的。因此，在最终待测辐射剂量测量结果的误差中，占据支配地位的其实是辐射源剂量率的不确定度。这意味着，我们在第2.5节中花费相当大的精力来减少灵敏度的统计误差实际上并没有起到有效的作用。这样的误差不均匀分配使得实验资源被极大地浪费了。如果要对此进行改进，有两种方案：其一是使用已知剂量率的标准源进行响应曲线的测量，但是由于标准源的剂量率太低，实验时间还是会大大延长；另一方案是，在测量待测源的剂量率时，也进行多次测量以降低统计误差，在有限的实验时间中，可以把响应曲线测量的数据量适当减少，将精力分配给剂量率的测量，实现误差的均匀分配。

此外，还需注意的是，根据第2.3节的图4展现的衰退曲线，在衰退时长大于1小时的情况下，热释光强度已经产生了相当可观的衰退。由于我们不知道指导老师在给剂量片辐射后存放了多长的衰退时间，这一偏差的修正也就无从谈起，只是作为一个系统性的同一方向的偏差存在。

补充材料

本报告的补充材料可以在 <https://www.yykospace.com/cn/scholar.html> 中获取。

参考文献

- [1] 刘小伟, 罗达玲, 张纯祥. 热释光剂量响应与升温速率的相关性[J]. 中山大学学报: 自然科学版, 1993, 32(2): 3.

A 预习报告教师签名页

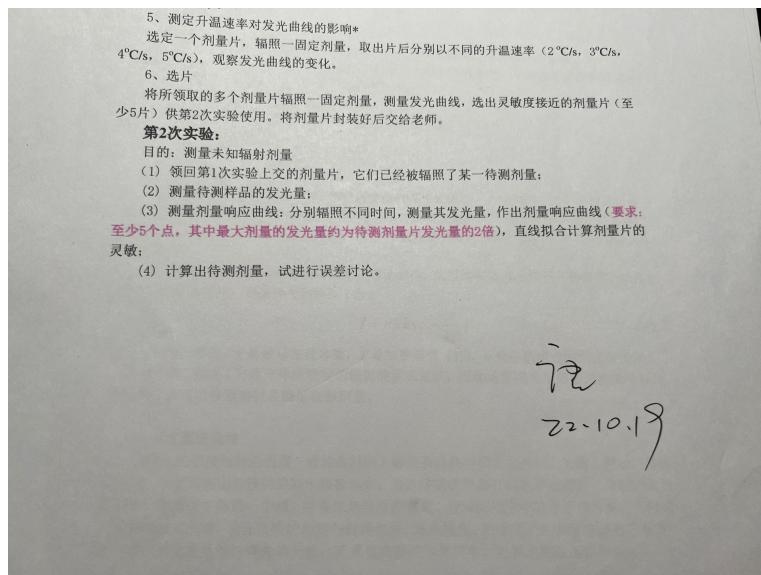


图 7. 预习报告教师签名页