

DOZYMETRIA LUMINESCENCYJNA: PRZEGLĄD METOD, DETEKTORÓW I ICH ZASTOSOWAŃ

Luminescent dosimetry: review of methods, detectors and their applications

Małgorzata Nowina Konopka, Paweł Bilski,
Barbara Obryk, Barbara Marczevska, Paweł Olko,
Mariusz Kłosowski i Wojciech Gieszczyk

Streszczenie: W artykule, po krótkim opisie rozwoju historycznego, przedstawiono teorię termoluminescencji (TL). Omówiono i porównano trzy metody stymulowania luminescencji termiczną (TSL), optyczną (OSL) i radiową (RPL). Przedstawiono i opisano szeroki zakres zastosowań detektorów TL w dozymetrii indywidualnej i środowiskowej z naciskiem na pomiary ultrawysokich dawek. Jako szczególnie ważne w dozymetrii klinicznej do radioterapii nowotworów oka, opracowano termoluminescencyjne detektory planarne 2D. Opisano udział zespołu z Instytutu Fizyki Jądrowej (IFJ) w kosmicznym eksperymencie MATROSHKA. Przedstawiono również nowe materiały TL i nowe metody pomiarowe.

Abstract: In the paper, after a brief description of historical development, the theory of thermoluminescence (TL) is presented. Three methods of thermally (TSL), optically (OSL) and radio (RPL) stimulated luminescence are discussed and compared. A wide range of applications of TL detectors in individual and environmental dosimetry with an attention put on ultra-high dose measurements is presented and described. As particularly important in clinical dosimetry for eye-tumor radiotherapy, the planar 2D detectors TL were developed. The participation of the Institute of Nuclear Physics (IFJ) group in the Cosmos MATROSHKA experiment is described. Also, the new TL materials and measurement methods are presented.

Słowa kluczowe: termoluminescencja, dozymetria, luminescencja, fluorek litu, luminescencja stymulowana radiowo, luminescencja stymulowana optycznie, luminescencja stymulowana termicznie

Keywords: Thermoluminescence, dosimetry, luminescence, lithium fluoride, radio stimulated luminescence, optically stimulated luminescence, thermally stimulated luminescence

1. WPROWADZANIE

Krótką historia

Termoluminescencja to proces kwantowy polegający na emisji promieniowania elektromagnetycznego przez określone materiały, zwane materiałami termoluminescencyjnymi (TL). Jest on wywołany akumulacją energii promieniowania jonizującego i jej uwolnieniem, w postaci kwantów światła, przez ogrzewanie. TL jest jednym z przykładów luminescencji materiału uzyskiwanej pod wpływem bodźców zewnętrznych.

Sam termin „luminescencja” został po raz pierwszy wprowadzony w 1888 r. przez Eilharda Wiedemanna [1], aby opisać emisję światła w procesach niezawierających ciepła, w przeciwieństwie do emisji światła przez materiały nagrzane do wysokiej temperatury. Ale faktycznie obserwacji termoluminescencji dokonano znacznie wcześniej.

Pierwszą obserwację termoluminescencji przypisuje się włoskiemu alchemikowi z Bolonii Vincenzo Casca-

riolo. W 1603 r. zauważył on emisję światła widzialnego z rozgrzanych bryłek baratu.

Robert Boyle (1627-1691) w 1668 r. opisał emisję światła z diamentu podgrzanego do temperatury ciała człowieka [2].

Alexander Stewart Herschel (1836-1907) odpowiednio w latach 1864 i 1873 zaobserwował jasnozielone światło emitowane z dwóch wewnętrznych części meteorów Geminidów [1].

W 1905 r. Maria Skłodowska-Curie (1867-1934) przebadła i opisała emisję termoluminescencyjną z naturalnego fluorku wapnia (CaF_2) wystawionego na promieniowanie ^{226}Ra [3]. Zaznaczyła, że naturalny fluorek wapnia świeci po podgrzaniu, a natężenie emitowanego światła zależy od czasu ekspozycji radem. Było to pierwsze zaobserwowane połączenie termoluminescencji z promieniowaniem jonizującym.

Ważny krok w kierunku zrozumienia termoluminescencji i jej praktycznych zastosowań w dozymetrii poczyniono dzięki modelowi zaproponowanemu przez

Johna Turtona Randalla (1905-1984) i Maurice'a Hugh Wilkinsa (1915-2004) w 1945 [4].

Instytut Fizyki Jądrowej (IFJ) był zaangażowany w badania termoluminescencji od lat 60-tych ubiegłego wieku przez Tadeusza Niewiadomskiego (1920-1996), który opracował detektory LiF: Mg,Ti (MTS-N) i uzyskał licencję Studsvik do ich produkcji [5]. W kolejnych latach zespół IFJ kierowany przez Niewiadomskiego opracował detektory cienkowarstwowe CaSO_4 :Dy do pomiaru promieniowania radonowego, a także materiały o wysokiej czułości: LiF: Mg,Cu,P (tzw. MCP) oraz detektory cienkowarstwowe MCP. Rok 2005 był podwójnym sukcesem zespołu IFJ. Wyprodukowano wtedy detektory LiF: Mg, Ti (tzw. MTT) ważne z uwagi na ich zastosowanie w pomiarach promieniowania kosmicznego. W tym samym roku opracowano planarne detektory 2D do pomiarów klinicznych. W 2006 r. zaobserwowano i opisano wysokotemperaturową emisję światła przez detektory LiF: Mg,Cu,P. Dało to możliwość pomiaru dawek w zakresie od 1 kGy do 1 MGy, gdzie Gy oznacza jednostkę promieniowania pochłoniętego o nazwie grey. Ostatnio pierwsze monokryształy LiF zostały otrzymane w IFJ metodą wyciągania zwaną Micro Pulling Down.

Ze względu na wieloletnie badania i uzyskane osiągnięcia w niniejszej pracy dokonano przeglądu przede wszystkim badań prowadzonych w IFJ nad materiałami TL i ich zastosowaniem w dozymetrii.

2. TEORIA TERMOLUMINESCENCJI

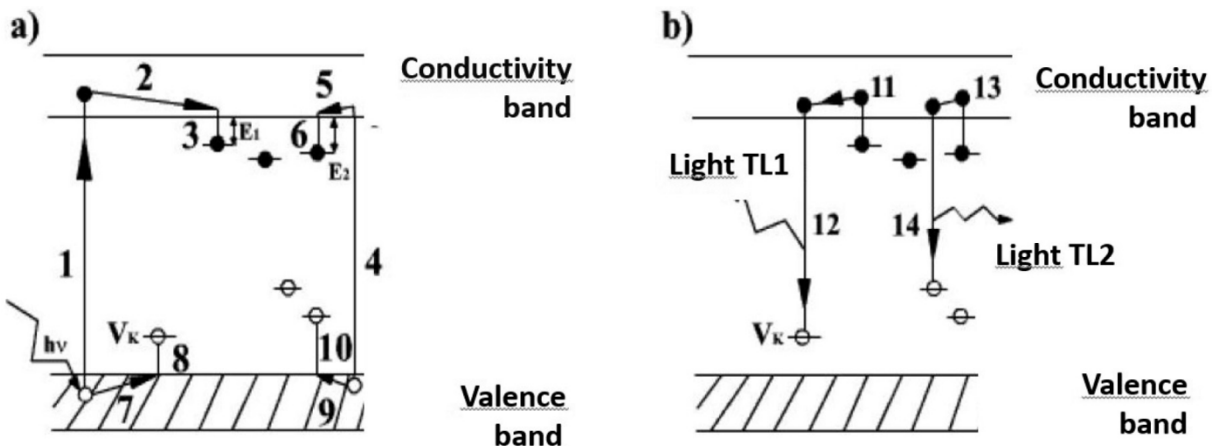
Model opisujący termoluminescencję oparty jest na kwantowej strukturze pasmowej ciał stałych [6]. Energię stanów elektronowych w kryształach można uważać za pochodną stanów występujących w poszczególnych atomach lub jonach tworzących kryształ. Wąskie poziomy energetyczne, które istnieją w jonach w wol-

nej przestrzeni, w sieci są poszerzone w pasma przez pole elektryczne wytwarzane przez otaczające jony. W idealnym kryształach wyróżniają się dwa pasma poziomów energetycznych (por. rys. 1):

- pasmo walencyjne (podstawowe) – przedział energii całkowicie wypełniony przez elektrony związane z jądrem atomowym,
- pasmo przewodnictwa – przedział energii elektronów walencyjnych, uwolnionych z atomu, które są swobodnymi nośnikami w ciele stałym; to pasmo jest puste, ale prawa mechaniki kwantowej pozwalają na jego wypełnienie.

Dolna granica pasma przewodnictwa znajduje się powyżej górnej granicy pasma walencyjnego. Różnica energii między tymi pasmami nazywana jest przerwą międzypasmową lub przerwą energetyczną. Umownie kryształy o szerokości przerwy energetycznej większej niż 3 eV zalicza się do dielektryków, a kryształy o szerokości przerwy energetycznej mniejszej niż 3 eV zalicza się do półprzewodników. Jeśli szerokość przerwy energetycznej jest równa zero lub pasmo walencyjne zachodzi na pasmo przewodnictwa, kryształ nazywany jest metalem.

Zjawisko termoluminescencji nie może wystąpić w idealnym kryształach dielektrycznym ze względu na dużą przerwę energetyczną. W rzeczywistości jednak struktura dielektryczna nigdy nie jest doskonała ze względu na obecność licznych defektów sieciowych. Defekty (zwane również pułapkami) wprowadzają dodatkowe poziomy energii do przerwy wzbronionej. Rodzaj i koncentrację defektów w kryształach można kontrolować poprzez domieszkowanie obcymi jonami. Wskutek defektów sieci krystalicznej w zakresie przerwy energetycznej powstają lokalne poziomy zwane pułapkami elektronowymi, jeśli są blisko pasma prze-



Rys. 1. Model kwantowy zmian konfiguracji elektronów i dziur w materiale dielektrycznym prowadzący do efektu TL. (a) – jonizacja spowodowana lokalizacją elektronów i dziur w centrach powstałych wokół domieszek. (b) – rekombinacja elektronów wywołana przez ogrzewanie i emisję światła
Fig. 1. Quantum model of changes in electrons and holes configuration in a dielectric material leading to a TL effect. (a) – ionisation causing a localization of electrons and holes in the centers created around the dopants. (b) – recombination of electrons caused by heating and light emission

wodnictwa i pułapkami piercingowymi (dziurkowymi lub po prostu dziurami), jeśli są blisko pasma walencyjnego. Elektrony przeniesione przez promieniowanie z pasma walencyjnego do pasma przewodnictwa są wychwytywane przez pułapki elektronowe. Pułapki piercingowe, będące centrami rekombinacji, podczas ogrzewania wychwytyują elektrony uwalniane z pułapek elektronowych, co w konsekwencji tego procesu prowadzi do emisji światła luminescencji.

Zjawisko termoluminescencji jest, zatem procesem dwuetapowym, w którym ekspozycja i odczyt mogą być od siebie oddalone w czasie. Czas odległy między naświetleniem a odczytem może wynosić setki tysięcy, a nawet miliony lat. Pierwszym etapem jest wzbudzenie materiału termoluminescencyjnego promieniowaniem jonizującym lub światłem. W tym kroku następuje jonizacja materiału, co oznacza, że elektrony z pasma walencyjnego lub z pasm położonych głębiej są przenoszone do pasma przewodnictwa. Niektóre z tych elektronów z pasma przewodnictwa mogą trafić do pułapek elektronowych, a dziury pozostawione przez elektrony migrują do pasma walencyjnego, przechodząc częściowo przez pułapki piercingowe. W zależności od roli, jaką pełnią pułapki na różnych poziomach, są one określane, jako pułapki aktywne, pułapki głębokie oraz tzw. centra rekombinacji. Tak, więc pod koniec pierwszego etapu zjawiska TL mamy określoną liczbę wypełnionych pułapek elektronowych i pułapek dziurowych, która jest w pewnym zakresie proporcjonalna do pochłoniętej energii.

W drugim etapie procesu TL elektrony z pułapek w wyniku ogrzewania są przenoszone do pasma przewodnictwa, skąd rekombinują do centrów rekombinacji zawierających uwięzione nośniki przeciwnego

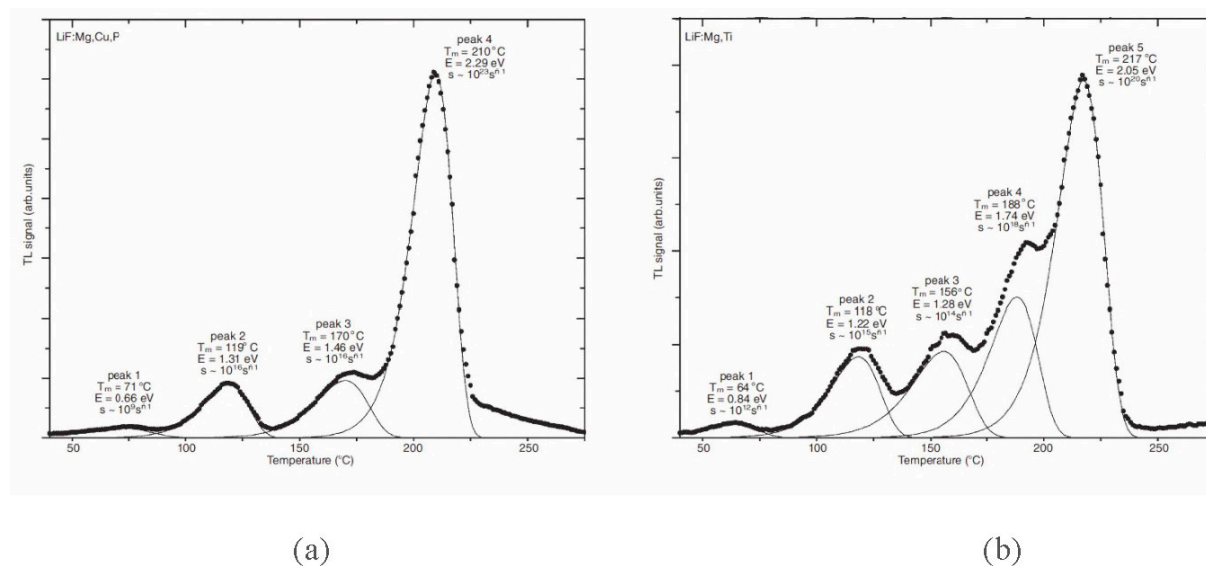
znaku (centra pułapka/dziura). W procesie rekombinacji elektrony uwalniają energię w postaci światła, dzięki czemu substancja powraca do stanu podstawowego (równowagi). Energia potrzebna do uwolnienia uwięzionych nośników jest, co najmniej równa różnicy między poziomem pułapki a pasmem przewodnictwa, (jeśli „aktywnymi nośnikami” są elektrony). Dla typowych materiałów termoluminescencyjnych (stosowanych w dozymetrii TL) różnica między tymi warstwami powinna być większa od energii promieniowania cieplnego w temperaturze pokojowej i mniejsza od energii promieniowania cieplnego w temperaturze kilkuset stopni. Typowe widma emisyjne w różnych temperaturach obserwowane dla LiF: MCP i LiF: MT pokazano odpowiednio na rys. 2(a) i 2(b). Zgodnie z oczekiwaniami obserwuje się wzrost intensywności sygnału TL wraz ze wzrostem temperatury.

W materiałach TL zachodzą również procesy konkurujące z procesem rekombinacji, co prowadzi do degradacji wydajności zjawiska TL [7]. Procesy te obejmują na przykład rekombinację elektronu z dziurą bez emisji światła lub ponowne wiązanie elektronu w pułapkę elektronową, jak również dużą liczbę elektronów tworzących fałę, co powoduje rozproszenie początkowo pochłoniętej energii w postaci energii cieplnej.

Zmierzoną dawkę zaabsorbowanego promieniowania D obliczamy ze wzoru [8]

$$D = I_{TL} C_{calib} \quad (1)$$

gdzie I_{TL} jest natężeniem sygnału TL, a C_{calib} to współczynnik kalibracji uwzględniający czułość detektora i geometrię eksperymentu.



Rys. 2. Kształty krzywych świecenia TL dla detektorów LiF: MCP(a) i LiF: MT(b), uzyskane przez liniowe nagrzewanie z prędkością 20 C/s. Dawka 1,5 mGy

Fig. 2. The shapes of TL glow curves for LiF: MCP (a) and LiF: MT (b) detectors, obtained by linear heating with rate 20 C/s. Dose 1.5 mGy

Jako I_{TL} wykorzystywana jest krzywa świecenia TL scałkowana w wybranym zakresie temperatur. Najczęściej wybiera się pik w okolicach 200°C. Ta zależność może być wykorzystana tylko w ograniczonym zakresie dawek i rodzajów energii promieniowania. W rzeczywistości w celu wyznaczenia dawki pochłoniętej konieczne jest zastosowanie szeregu współczynników korekcyjnych, które uwzględniają m.in. nieliniowość charakterystyki dawki, poprawkę na wartość energii oraz zanik sygnału w czasie (fading).

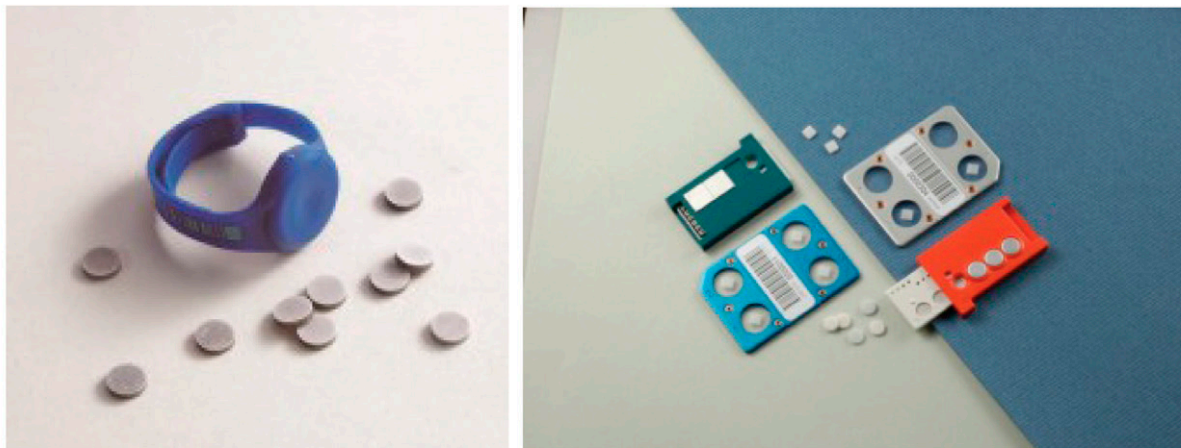
3. TYPY DETEKTORÓW TL I ICH WŁAŚCIWOŚCI

Najczęściej stosowanym materiałem TL jest fluorek litu LiF. Na jego bazie oparte jest kilka detektorów, w szczególności takich jak: LiF: Mg,Ti (zwany MTS) oraz LiF: Mg,Cu,P (zwany MCP) [9-12]. Do produkcji detektorów TL stosuje się lit naturalny, zawierający 92,5% ${}^7\text{Li}$ i 7,5% ${}^6\text{Li}$ oraz lit wzbogacony lub zubożony w izotop ${}^6\text{Li}$. W ten sposób np. dla każdego typu MCP uzyskuje się trzy podtypy: MCP-N, MCP-6 i MCP-7. Niektóre z detektorów opracowanych w IFJ pokazano na rys.3.



(a)

(b)



(c)

(d)

Rys. 3. Różne rodzaje detektorów TL opracowanych i wyprodukowanych w IFJ. (a) MTS-N (LiF: Mg,Ti) produkowane w kształcie okrągłych pastylek, jednomilimetrowych kubicznych czujników (chipów) lub proszku są stosowane na całym świecie w ochronie przed promieniowaniem, monitorowaniu środowiska i dozimetrii klinicznej, (b) EYE-DTM pozwala na precyzyjne pomiary dawek promieniowania na soczewkę oka, również w przypadku stosowania okularów ochronnych, (c) uchwyty pierścienkowe umożliwiające pomiar dawki podczas operacji z promieniowaniem, (d) aluminiowe karty dozymetryczne TLD, z pastylkami lub chipami TL zatopionymi w fluoropolimerze (np. PTFE), mogą być odczytywane we wszystkich kompatybilnych czytnikach gorącego gazu. W karcie montuje się od jednego do czterech detektorów w dowolnych konfiguracjach i szczelnie zamkniętych w folii fluoropolimerowej. Różne kształty, grubość i skład izotopowy detektorów (${}^7\text{Li}$, ${}^6\text{Li}$, naturalny Li) różne kolory i numery kart są dostępne na zamówienie.

Fig. 3. Different forms TL detectors developed and manufactured in IFJ. (a) MTS-N (LiF: Mg,Ti) produced in form of round pellets, one millimeter cubic chips or powder are environmental used world-wide in radiation protection, environmental monitoring and clinical dosimetry, (b) EYE-DTM allows for precise measurements of radiation doses eye lens, also in case when protective glasses are used, (c) ring holders enabling dose measurement during operations with radiation, (d) TLD aluminium dosimetric cards, with TL pellets or chips sealed in fluoropolymer (eg. PTFE), can be evaluated in all compatible hot-gas readers. One to four detectors in arbitrary configurations and sealed in fluoropolymer foil are mounted into the card. Different shape, thickness and isotopic composition of detectors (${}^7\text{Li}$, ${}^6\text{Li}$, natural Li) different colors and card numbers are available on request

Detektory MTS oparte na LiF: Mg, Ti zostały odkryte w latach 40-tych ubiegłego wieku. W latach 60-tych T. Niewiadomski wraz z zespołem IFJ opracował technologię wytwarzania detektorów LiF: Mg,Ti (12 ppm Ti, 200 ppm Mg) w postaci spiekanych pastylek o średnicy 4,4 mm i grubości od 0,4 do 0,9 mm. Detektory te są doskonale przetestowane i stały się standardowymi dozymetrycznymi miernikami promieniowania jonizującego TL. Sygnały detektorów MTS-N wykazują liniową zależność od dawki do około 1 Gy. Zanikanie natężenia sygnału w czasie w temperaturze pokojowej (fading) wynosi zaledwie kilka procent rocznie [9].

Detektory MTT opracowano w IFJ poprzez odpowiedni dobór koncentracji domieszek. Zawierają około 3 razy mniej Mg i 10 razy więcej Ti niż standardowy detektor MTS. Skutkiem tego wykazują większą wydajność przy silnie jonizującym promieniowaniu. Jednak ich czułość jest około 2,5 razy mniejsza niż detektorów MTS, co utrudnia pomiar dawek poniżej 1 mGy [13].

Pierwszy detektor MCP został utworzony przez Nakajima w 1978 roku [14]. W 1985 r. T. Niewiadomski opracował detektor MCP-N o około 30-krotnie większym zakresie czułości i około 3-krotnie niższym tle własnym od dotychczas znanego MCP. W dozymetrii detektory MCP-N, opracowane wykorzystaniu pików dozymetrycznego w temperaturze około 210°C (por. rys.4) nadają się do pomiaru dawek od 1 μGy do maksymalnie 1 kGy.

Bardzo ważnym odkryciem w badaniach MCP było zaobserwowanie pików w wysokotemperaturowej emisji detektorów LiF: Mg,Cu,P, podgrzanych do około 600°C po ekspozycji od 1kGy do 1 MGy [15-16].

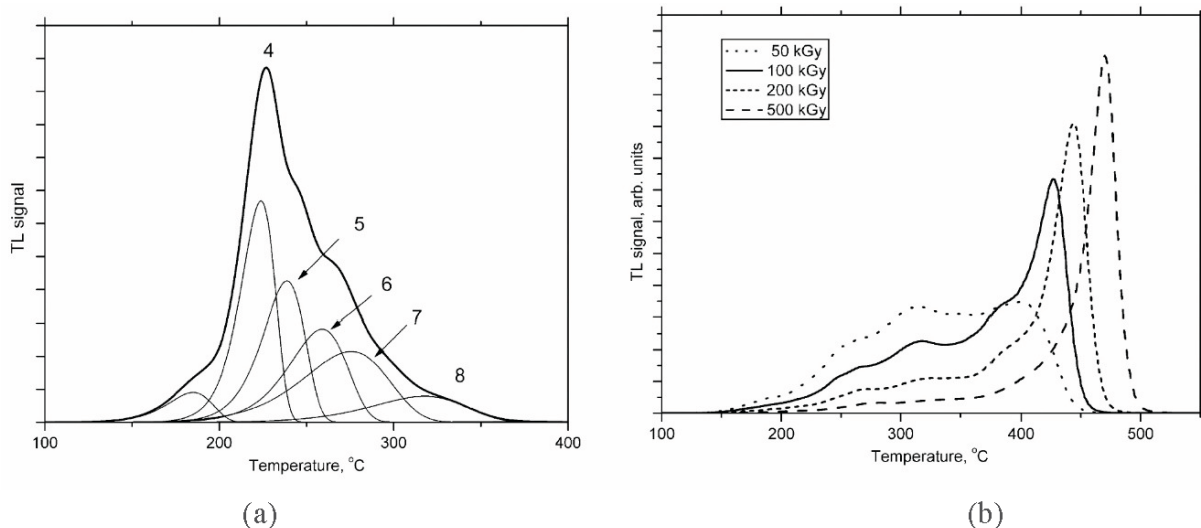
Wraz ze wzrostem dawki jego położenie przesuwa się w kierunku wyższych temperatur (por. rys.4). Pik

ma zastosowanie do pomiarów ultrawysokich dawek. Nowa metoda w połączeniu z tradycyjną metodą określania dawki opartą na głównym pikie dozymetrycznym sprawia, że detektor LiF: Mg,Cu,P jest wyjątkowy: zdolny do pomiaru dawek w zakresie 12 rzędów wielkości od μGy do MGy.

Z punktu widzenia zastosowań w dozymetrii detektory TL są określone przez następujące parametry:

- czułość, definiowana jako całkowite natężenie sygnału emitowanego przez detektor na jednostkę dawki pochłoniętej,
- liniowość charakterystyki dawki. W przypadku większości detektorów TL sygnał odpowiedzi w funkcji dawki jest liniowy do około kilku Gy, kiedy staje się podliniowy lub nadliniowy względem saturacji [17],
- zanikanie – spadek sygnału w czasie,
- podobieństwo tkankowe opisane wzorem Furetty [18],
- względna wydajność; która jest stosunkiem sygnału detektora TL dla badanego promieniowania do sygnału tego detektora dla promieniowania odniesienia, na przykład ^{137}Cs lub ^{60}Co ,
- własne tło. Jest to sygnał mierzony przez nienaświetlony detektor, wyrażony w jednostkach dawki. Dla detektorów MCP-N jest to około kilkuset Gy.

Metoda TLD jest najczęściej stosowaną techniką w dozymetrii indywidualnej i środowiskowej. Ze względu na niewielkie rozmiary, niską cenę, dobrą charakterystykę energetyczną, szeroki zakres mierzonych dawek, niewrażliwość na czynniki środowiskowe, detektory TL są chętnie stosowane praktycznie we wszystkich dziedzinach dozymetrii. Jednak stale rozwijane są nowe materiały i nowe metody pomiaru TLD.



Rys. 4. Zmiany kształtu krzywej świecenia detektorów MCP-N poddanych działaniu ultrawysokich dawek: (a) ekspozycja poniżej 50 kGy rozłożona na 8 pików, (b) ekspozycja na dawki powyżej 50 kGy: pojawia się nowy pik

Fig. 4. Changes of the glow-curve shape of MCP-N detectors exposed to ultra high doses: (a) exposure below 50 kGy deconvoluted on 8 peaks, (b) exposures to doses above 50 kGy: a new peak appears

4. OPTYCZNIE STYMULOWANA LUMINESCENCJA (OSL) I RADIOFOTO-LUMINESCENCJA (RPL)

Oprócz detektorów luminescencyjnych termicznie stymulowanych opracowywane są również detektory (OSL) stymulowane optycznie, czyli światłem. Istnieją również radio-fotodetektory sterowane promieniowaniem jonizującym i światłem. W detektorach OSL elektrony są wzbudzone przez światło do pasma przewodnictwa. Migrują w pobliżu centrów dziurowych i rekombinują dając emisję światła. Detektory OSL są podatne na działanie światła, dlatego należy je przechowywać w ciemności.

Technika radiofotoluminescencji (RPL) polega na jonizacji i pułapkowaniu nośników ładunku. Sygnał RPL jest wynikiem przejścia elektronu ze stanu wzbudzonego do stanu podstawowego w obrębie danego defektu. Energia emitowanego światła jest mniejsza od energii stymulującej. W efekcie długość fali emitowanego światła jest zawsze większa niż długość fali stymulujących fotonów. Sygnałowi RPL towarzyszy silna fotoluminescencja (niewynikająca z ekspozycji na promieniowanie), więc technika daje wysokie tło [19, 20, 21].

Porównując techniki pomiarowe TL i OSL widzimy, że opierają się one na tym samym mechanizmie fizycznym, a różnią się jedynie czynnikami stymulującymi (światło lub ciepło). Pozostałe techniki, RPL i OSL, różnią się mechanizmem fizycznym, a są podobne pod względem czynnika stymulującego (światła).

Dostępne materiały dozymetryczne do techniki TL to: LiF: Mg,Ti, LiF: Mg,Cu,P, CaSO₄:Dy, CaF₂:Tm, Li₂B₄O₇:Cu, Mg₂SiO₄ i inne. W przypadku OSL stosuje się Al₂O₃:C i BeO. W przypadku RPL stosuje się szkła fosforanowe oraz LiF dla wysokich dawek.

5. ZASTOSOWANIE DOZYMETRÓW TERMOLUMINESCENCYJNYCH

Ponad 1 milion detektorów TL firmy IFJ jest obecnie używanych w elektrowniach jądrowych, a także w klinikach i laboratoriach dozymetrycznych w ponad 40 krajach.

W dozymetrii indywidualnej zwykle mamy do czynienia z dawkami w zakresie od 0,1 mSv do 1 Sv, wywołanymi energiami promieniowania od 15 keV do 3 MeV w czasie ekspozycji od 1 do 3 miesięcy (skrót Sv oznacza jednostkę dawki równoważnej promieniowania o nazwie siver). Najczęściej spotykane typy detektorów termoluminescencyjnych, oparte na MTS-N lub MCP-N w postaci pastylek, są wykonane techniką spiekania [5-9]. W zależności od przeznaczenia umieszcza się je w specjalnych kasetach lub w pojemnikach w kształcie pierścionków. Konstrukcja kasety umożliwiła pomiar dawki dozymetrycznej „na głębokości tkanki” w zakresie od 1000 mg/cm² do 7 mg/cm². Dozymetry neutronowe pokryte są specjalną osłoną wykonaną ze

szkła borowego z uwagi na duży przekrój czynny ¹⁰B na neutrony. Termoluminescencyjne dozymetry soczewkowe Eye-D™ są umieszczane w specjalnym uchwycie nakładanym na elastyczną opaskę, co pozwala je używać również osobom noszącym tradycyjne okulary.

Detektory stosowane w dozymetrii środowiskowej są bardzo czułe. Wykrywają dawki w zakresie 3 rzędów wielkości, od 0,03 mSv do 1 Sv i są wykorzystywane do monitorowania środowiska naturalnego oraz środowiska pracy.

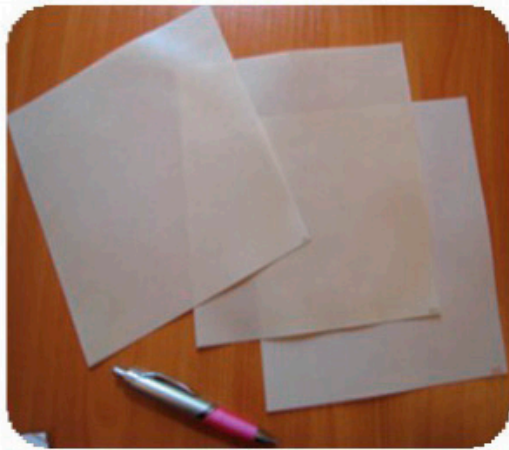
Opracowane niedawno detektory LiF: Mg,Cu,P do pomiaru ultrawysokich dawek zostały zastosowane do badania różnych pól promieniowania w urządzeniach pracujących w Wielkim Zderzaczu Hadronów (LHC), zlokalizowanym w CERN (Europejskim Ośrodku Badań Jądrowych), Genewa, Szwajcaria. W infrastrukturze eksperymentu LHCb zamontowano ponad sto detektorów TL. Szczególnie ambitnym wyzwaniem było zainstalowanie dozymetrów TL w Międzynarodowym Termojądrowym Reaktorze w Cadarache we Francji, gdzie generowane są strumienie prędkich neutronów.

5.1 Dozymetria kliniczna

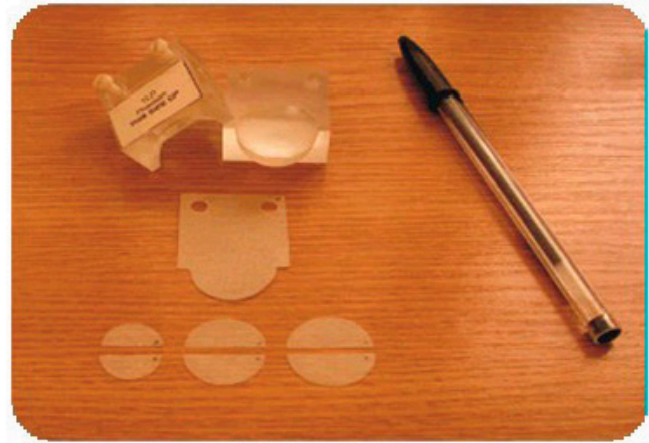
Radioterapia protonowa jest jedną z metod leczenia nowotworów zlokalizowanych w szczególnie czułych organach np. w gałce ocznej. W tego typu terapii do napromieniania guza stosuje się wiązkę protonów dostosowaną do kształtu guza. Jest to charakterystyczna cecha radioterapii protonowej. Dzięki tzw. pikowi Bragga odpowiednia dawka promieniowania jest precyzyjnie dostarczana do leczonego guza, a równoczesne naświetlenie zdrowych tkanek jest minimalne, co zmniejsza skutki uboczne leczenia. Radioterapia protonowa umożliwia skuteczne niszczenie guzów, oszczędzając krytyczne narządy, takie jak nerw wzrokowy, płamka żółta czy soczewka. Dzięki temu pacjenci mogą zachować swój wzrok w leczonym oku.

Częścią IFJ jest Centrum Cyklotronowe Bronowice (CCB), zajmujące się wykorzystaniem wiązki protonów oprócz badań naukowych do radioterapii nowotworów. Bazą aparaturową Centrum są dwa cyklotrony C-230 i AIC-144 oraz stanowiska gantry. Gantry, to obrotowe ramię, które stanowi zestaw magnesów odchylających wiązkę terapeutyczną, umieszczonych na sztywnej, obracanej konstrukcji stalowej. W zastosowaniach medycznych wymagania dotyczące dokładności pomiaru dawki są bardzo wysokie. Należy brać pod uwagę nawet niewielkie zmiany czułości TLD, dlatego do mapowania dawki opracowano i zrealizowano prototyp dwuwymiarowych planarnych (2D) systemów dozymetrycznych TL [22]. Niektóre ich przykłady pokazano na rys.5.

Detektory TL o dużej powierzchni (kilku cm²) zostały wykonane przy użyciu różnych technik. Uzyskuje się je na przykład przez: przyklejenie proszku termoluminescencyjnego (LiF: Mg,Ti lub LiF: Mg,Cu,P) do folii



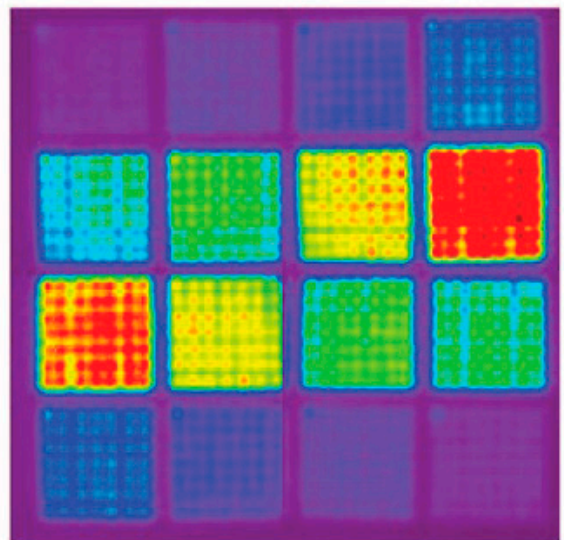
(a)



(b)



(c)



(d)

Rys. 5. Detektory planarne 2D TL (a-c) i przykłady rejestrowanych rozkładów dawki promieniowania (d)
Fig. 5. Planar 2D TL detectors (a-c) and examples of the registered radiation dose distributions (d)

alumiowej o grubości 0,3 mm lub przez sprasowanie proszku i spiekanie. Obecnie planarny układ TL jest stosowany do wizualizacji submilimetrowej. Elastyczny detektor owija się wokół badanego obiektu (np. fantomu gałki ocznej zrobionego ze sztucznego tworzywa równoważnego żywej tkance) i umieszcza we wkłęsłym aplikatorze okulistycznym Ru-106. Po ekspozycji detektor zostaje rozwinięty i wyprostowany do odczytu. Planarny dwuwymiarowy detektor TL (2D) opracowany w IFJ, zamiast konwencjonalnego fotopowielacza, współpracuje z czułą kamerą CCD (Charge Couple Device). Taka konfiguracja pozwala na wyznaczenie natężenia światła wywołanego emisją TL z rozdzielczością przestrzenną 0,1 mm. Zarejestrowany rozkład dawki promieniowania jest obrazem izo-dawki: każdy kolor reprezentuje jeden poziom uszkodzenia (rys.5 (d)).

5.2 Detektory TLD w eksploracji Kosmosu

Promieniowanie kosmiczne zostało odkryte przez Victora Franza Hessa 7 sierpnia 1912 r. (Nagroda Nobla w 1936 roku) i dokładnie 100 lat później, 7 sierpnia 2012 r. łazik Curiosity wykonał pierwszy pomiar tego promieniowania na Marsie. Teraz promy kosmiczne są w stanie penetrować przestrzeń w odległości do 300 km od Ziemi.

Promieniowanie kosmiczne składa się z trzech składowych:

- Składowa galaktyczna pochodzi spoza Układu Słonecznego. Jest ona bardzo wysoko energetyczna (10^{20} eV), wysoce przenikliwa, trudna do osłony, stymulująca promieniowanie wtórne. Jej źródłem są głównie jądra atomów od wodoru ^1H do uranu ^{238}U

o dużej gęstości jonizacji, dające silne efekty biologiczne.

- Składowa słoneczna wykazuje aktywność cykliczną. Jest rodzajem wiatru słonecznego o niskiej energii, wywołanego eksplozjami słonecznymi. Zaburza składową galaktyczną.
- Pasy radiacyjne Van Allena to pasy zewnętrzne, składające się głównie z elektronów i protonów schwytych w pułapkę przez ziemskie pole magnetyczne.

Narażenie astronautów na promieniowanie kosmiczne jest istotnym problemem w długoterminowych misjach na orbicie okołoziemskiej oraz w misjach międzyplanetarnych. Aby oszacować radiacyjne ryzyko astronautów, Europejska Agencja Kosmiczna przygotowała eksperyment o nazwie „Matroshka”. W ramach tego eksperymentu specjalny humanoidalny fantom został na okres jednego roku poddany ekspozycji w otwartej (poza pojazdem) przestrzeni na zewnątrz Międzynarodowej Stacji Kosmicznej. Wewnątrz fantomu umieszczono kilka tysięcy czujników pomiarowych w celu określenia dawek przypadających na poszczególne narządy. Do takich pomiarów w ludzkim fantomie najlepiej nadają się detektory termoluminescencyjne (TLD) o objętości kilku mm³, które nie wymagają żadnego zasilania i kumulują w czasie sygnał wywołany promieniowaniem. Większość detektorów użytych w tym eksperymencie została przygotowana w Instytucie Fizyki Jądrowej w Krakowie [23-24]. Dzięki połączeniu różnych typów detektorów możliwe było odseparowanie składowych pola promieniowania kosmicznego i oszacowanie gęstości ich jonizacji.

TLD zostały specjalnie zoptymalizowane pod kątem dozymetrii kosmicznej. Ich właściwości badano za pomocą wiązek jonów pochodzących z różnych akceleratorów (HIMAC w Japonii, Brookhaven i Loma Linda w USA).

Całkowity czas trwania eksperymentów wynosił 4705 dni. Pomiary wykonano wewnątrz i na zewnątrz stacji kosmicznej. Model ciała ludzkiego MATROSHKA, przeznaczony do wyznaczania przestrzennego rozkładu dawki promieniowania i oceny narażenia astronautów na promieniowanie, został wyposażony w zestaw aktywnych i pasywnych detektorów promieniowania. Fantom składał się z 33 warstw ułożonych w regularnej sieci, o wektorze bazowym długości 2,5 cm, zawierającej 1631 miejsc pomiarowych z 5373 detektorami TLD (3140 z IFJ PAN) i 7 detektorami aktywnymi.

Eksperyment został przeprowadzony w czterech etapach:

- MATROSHKA1 – 2004/05 – 616 dni (539 na zewnątrz ISS)
- MATROSHKA2A – 2006 – 337 dni
- MATROSHKA2B – 2007/2009 – 518 dni
- MATROSHKA – 2 KIBO

Trzy pierwsze z nich zmierzyły dawki równoważne odpowiednio: 0,695 mSv/d, 0,529 mSv/d i 0,569 mSv/d.

Osobiste dozymetry astronautów wykazały odpowiednio: 2,330 mSv/d, 0,620 mSv/d i 0,644 mSv/d, co oznacza, że te dozymetry przeszacowały ekspozycję na promieniowanie o współczynnik 3 na zewnątrz ISS i 13 – 18% wewnątrz Międzynarodowej Stacji Kosmicznej (ISS).

5.3 Dozymetria ratunkowa

Szybka ocena dawki promieniowania po niespodziewanej ekspozycji jest zadaniem dozymetrii wypadkowej [25]. W razie wypadku radiologicznego szkła pochodzące z ekranów telefonów komórkowych, umieszczanych zwykle przy ciele człowieka, mogą służyć jako awaryjne termoluminescencyjne dozymetry osobiste.

Czas pomiędzy napromienianiem a odczytem TL jest kluczowy, dlatego należy zoptymalizować przygotowanie ekranu telefonu komórkowego i warunki jego odczytu.

Przygotowanie polega na zdjęciu ekranu z telefonu, usunięciu folii, wytrawieniu kwasem lub mieszaniną kwasów i pocięciu na próbkę 3×3mm². Następnie po wyborze filtra możliwe jest odczytanie widma sygnału.

Szkła wyekstrahowane z różnych marek telefonów komórkowych mają różne właściwości dozymetryczne, ale wszystkie dają sygnał luminescencyjny, który można wykorzystać do określenia dawki pochłanianego promieniowania.

Innym przykładem wykorzystania obiektu codziennego użytku, w którym stosowany jest sygnał TL, jest system zabezpieczeń banknotów. Nowe banknoty, które weszły do obiegu w Polsce wiosną 2014 r. mają wysoki sygnał własny, więc są mniej podatne na fałszowanie.

5.4 Mikroobrazowanie rozkładu dawki promieniowania

Nowe działania, takie jak mikroobrazowanie rozkładu dawki, diagnostyka wiązek jonów, radiografia (z rozdzielczością poniżej 1 μm) oraz obserwacja pojedynczych śladów naładowanych cząstek wymagają detektorów monokrystalicznych LiF. Używa się dwóch technik hodowli monokryształów: Micro Pulling Down (mikro ciągnięcie) oraz metody Czochralskiego, które są jeszcze udoskonalane i testowane. [26].

6. WNIOSKI

W artykule dokonano przeglądu badań nad właściwościami materiałów TL oraz nad ich zastosowaniem w dozymetrii. Inną ważną dziedziną, nie omawianą tutaj, w której termoluminescencja znajduje zastosowanie, jest datowanie [27-28] minerałów i innych materiałów, zwłaszcza w geologii, archeologii i hydrologii.

Luminescencja stymulowana termicznie jest najczęściej stosowaną techniką spośród wszystkich metod

pomiarowych stosowanych w pasywnej dozymetrii promieniowania jonizującego.

Obecnie rozwój technik dozymetrycznych zmierza w kierunku stymulacji optycznej, ponieważ stymulacja światłem nie wymaga podgrzewania próbki, ani stosowania atmosfery ochronnej. Detektory OSL mają szerokie możliwości strojenia długości fali stymulującej i pomiarowej oraz możliwość wielokrotnego odczytu raz napromieniowanych próbek. Mogą również znaleźć zastosowanie w obrazowaniu wypadkowym oraz mikro-obrazowaniu wiązek jonów.

Małgorzata Nowina Konopka*,
Paweł Bilski*, Barbara Obryk*,
Barbara Marczevska*, Paweł Olko*,
Mariusz Kłosowski*, Wojciech Gieszczyk*
*Instytut Fizyki Jądrowej im. H. Niewodniczańskiego
Polskiej Akademii Nauk, Kraków

Literatura:

- [1] free Wikipedia: <http://www.wikipedia.org/>
- [2] R. Boyle, Register of the Royal Society, 213 (1663).
- [3] M. Skłodowska-Curie, Discovery of Radium, Century Magazine, 461-466 (1904),
- [4] J. T. Randall & M. H. Wilkins, 945, Phosphorescence and Electron Traps, I and II, The Study of Trap Distributions, Proc. R. Soc. A., **184**, 366-389 (1945), ibidem 390-407 (1945).
- [5] T. Niewiadomski, 25 years of thermoluminescence dosimetry at IFJ, Rad. Prot. Dosim., **85**, 269-272 (1994).
- [6] Encyklopedia fizyki 1972, Praca zbiorowa, Państwowe Wydawnictwo Naukowe (in Polish)
- [7] F. McKinlay, Thermoluminescence dosimetry, Medical Physics Handbook 5, Adam Hilger Ltd. 1981
- [8] Z. Hrynkiewicz, et al., Człowiek i promieniowanie jonizujące, Wydawnictwo Naukowe PWN, 70-128 (in Polish).
- [9] T. Niewiadomski, Dozymetria termoluminescencyjna w praktyce, Raport IFJ nr 1550/D,(1991)(in Polish).
- [10] P. Bilski, Lithium Fluoride: From LiF: MgTi to LiF: Mg,Cu,P, Radiat. Prot. Dosim., **100**, 199-206 (2002).
- [11] Y. S. Horowitz, LiF: Mg,Ti versus LiF: Mg Cu,P: the competition heats up, Radiat. Prot. Dosim., **47**, 135-141(1993).
- [12] S. W. S. McKeever, M. Moscovitch, P.D Townsend, Thermoluminescence dosimetry materials: properties and uses, Nuclear Technology Publishing, 1995.
- [13] P. Bilski, M. Budzanowski, P. Olko, E. Mandowska, LiF: MgTi (MTT) detectors optimised for High – LET dosimetry, Radiat. Meas., **38**, 427-430 (2004).
- [14] T. Nakajima, Y. Murayama, T. Matsuzawa, A. Koyano, Development of Highly Sensitive LiF Thermoluminescence Dosimeter and its Applications, Nucl. Instr. Meth., **157**, 155-162 (1978).
- [15] B. Obryk, P. Bilski, M. Budzanowski, M. Fuerstner, C. Ilgner, F. Jacquenod, P. Olko, M. Puchalska, H. Vincke, The response of different types of TL lithium fluoride detectors to high-energy mixed radiation fields., Radiat. Meas., **43**, 1144-1148 (2008).
- [16] P. Bilski, B. Obryk, P. Olko, E. Mandowska, A. Mandowski, J. L. Kim, Characteristics of LiF: Mg, Cu, P thermoluminescence at ultra-high dose range, Radiat. Meas., **43**(2), 315-318 (2008).
- [17] P. Bilski, J. Blomgren, F. d'Enrico, A. Esposito, G. Fehrenbacher, F. Fernandez, A. Fuchs, N. Golnik, V. Lacoste, A. Leuschner, S. Sandri, M. Silari, F. Spurny, B. Wiegel, P. Wright, The problems associated with the monitoring of complex workplace radiation fields at European high-energy accelerations and thermonuclear fusion facilities, Radiat. Prot. Dosim., **126**, 491-496(2007).
- [18] C. Furetta, P. Weng, Operational Thermoluminescence Dosimetry World Scientific Publishing, Co. Pte. Ltd., Singapore, 1998
- [19] J.A. Perry, RPL Dosimetry. Radioluminescence in Health Physics, Medical Science Series, IOP Publishing Ltd, Bristol & Boston, 1987.
- [20] M. Sialri, Passive Dosimeters in LHC, 5th LHC Radiation Workshop, 2005; <http://indico.cern.ch/conferenceDisplay.py?confid=a056455>
- [21] H. Vincke, I. Brunner, I. Floret, D. Forkel-Wirth, M. Fuestner, S. Mayer, C. Thesis, Response of Alanine and Radio-Photo-Luminescence dosimeters to mixed high-energy radiation fields, Radiat. Prot. Dosim., **125**(1-4), 340-344 (2007).
- [22] M. Sądel, P. Bilski, J. Swakoń, M. Ptaszkiewicz, M. Boberek, P. Olko, Relative thermoluminescent efficiency of LiF detectors for proton radiation: batch variability and energy dependence, Radiat. Meas., **56**, 205-208 (2013).
- [23] M. Ptaszkiewicz, P. Bilski, High Accuracy TL Dosimetry in Measurements of Organ Doses due to Space Radiation - Matroshka Experiment, Konferencja „Fizyka i Inżynieria we Współczesnej Medycynie i Ochronie Zdrowia” & 13 Zjazd PTFM, Warszawa, 29-30 September 2005, K. Zaremba et al (Ed.), Polskie Towarzystwo Fizyki Medycznej (PTFM), 96 (2005).
- [24] P. Olko, P. Bilski, Ł. Czopyk, Application of TLD Detectors for Measurements of Radiation Doses in Space, Konferencja „Fizyka i Inżynieria we Współczesnej Medycynie i Ochronie Zdrowia” i 13 Zjazd PTFM, Warszawa, 29-30 września 2005, K. Zaremba et al. (Ed.), PTFM, 79 (2005).
- [25] A. Mroziak, B. Marczevska, P. Bilski, M. Kłosowski, Rad. Phys.&Chem.,**104**, 88-92 (2014).
- [26] B. Marczevska, P. Bilski, W. Gieszczyk, M. Kłosowski, Two-dimensional thermoluminescence method for checking LiF crystals homogeneity, Journal of Crystal Growth, **8**, 88-92 (2014).
- [27] Luminescence applications in biological, chemical, environmental, and hydrological sciences, Marvin C. Goldberg (Ed.), American Chemical Society, Symposium Series, vol. **383**, 1989; DOI: 10.1021/bk-1989-0383
- [28] M. J. Aitken, Thermoluminescence dating, Academic Press, London 1985.