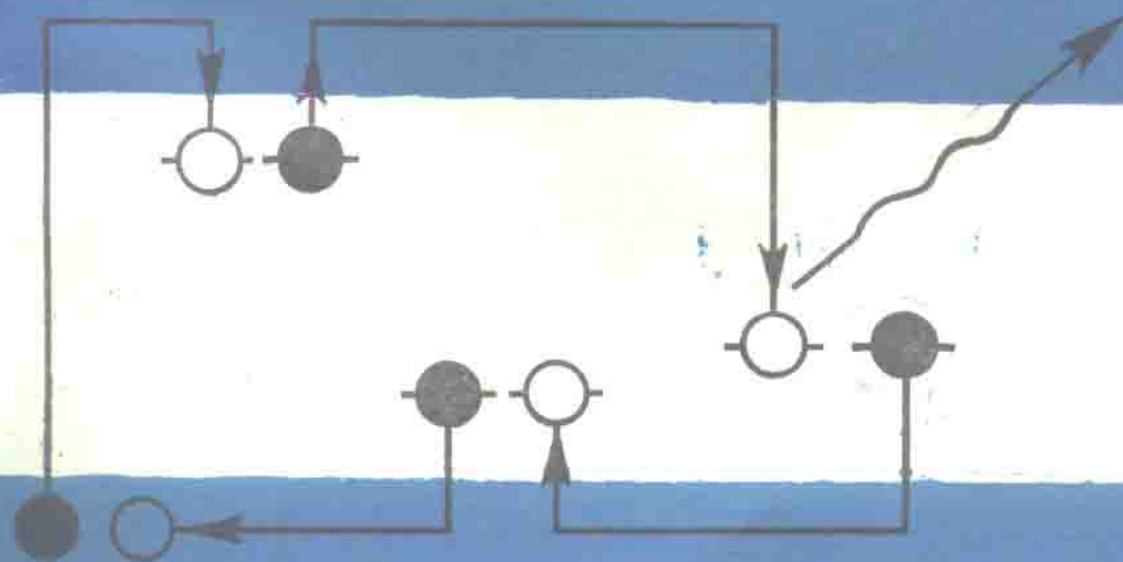


应用热释光剂量学

M. Oberhofer A. Scharmann 等著

中国计量出版社



应用热释光剂量学

M. Oberhofer A. Scharmann 等著

张彤 华钟亮 李湘葆 译

朱中梅 何礼江 高钧成

李颖 李元芳 校

内 容 提 要

本书分两篇,共二十章。第一篇基础知识,分九章,系统地论述了热释光剂量学的理论基础,有关仪器设备,热释光探测器的制备方法,剂量特性,测量的精确度与准确度分析以及与其他固体剂量测量技术的比较等。第二篇应用,分十一章,主要论述了热释光剂量学在个人剂量测量,环境监测,医学、生物学、生态学、生物化学、反应堆工程,年代测定,剂量标准化及比对等中的实际应用及其存在的问题。最后简述了热释光剂量学的最新研究成果及其发展前景。

本书可供从事辐射防护,放射治疗,环境保护,反应堆工程,地质学、考古学、生物学和核物理等有关专业人员及有关大专院校师生参考。

APPLIED THERMOLUMINESCENCE DOSIMETRY

M. Oberhofer A. Scharmann

Published for the Commission of the
European Communities by Adam Hilger 1982

应用热释光剂量学

M. Oberhofer A. Scharmann 等著

张 彤 华钟亮 李湘葆 译

朱中梅 何礼江 高钧成

李 颖 李元芳 校

责任编辑 陈艳春

中国计量出版社出版

北京和平门11区7号

中国计量出版社印刷厂印刷

新华书店北京发行所发行

开本 787×1092/16 印张 20.75 字数 487 千字

1988年5月第1版 1988年5月第1次印刷

印数1—5 000

ISBN 7-5026-0088-4/TB·72

定价 5.80 元

序

热释光剂量学是固体剂量学的一个分支。尽管现代化学的奠基者 Robert Boyle 早在 300 多年以前 (1663 年) 就发现了热释光现象, 但直到本世纪的 40 年代, 才开始对热释光的应用问题进行研究。60 年代以后, 随着计算机的普遍使用, 热释光剂量测量技术便得到了迅速发展。

60 年代以前, 热释光剂量测量技术还鲜为人知。但随着这项技术的发展, 它已被广泛应用于人员的辐照剂量监督, 环境的辐射本底监测, 核反应堆工程的影响的测定, 中子剂量测量, 放射治疗和放射诊断学中的辐照剂量测定, 考古学中的年代断定以及动物习性研究等领域。近年来, 在材料科学, 电子原件试验, 辐射消毒, 辐射化学, 碳氢化合物的裂化与聚合, 橡胶的硬化处理及食品加工工业中, 也普遍采用热释光技术来进行剂量测量。

由于热释光剂量测量技术的应用领域的不断扩大, 各国的科技工作者日益感到亟需一本比较系统地介绍热释光剂量测量技术的书籍。

有鉴于此, 欧洲经济共同体的 13 位热释光专家和学者于 1980 年合作编著了《应用热释光剂量学》一书, 填补了这方面的空白, 受到了各国有关专家和学者的赞誉。

该书是世界上第一本全面论述热释光的基础理论及实用技术的书籍, 它几乎囊括了现代热释光剂量测量技术的全部知识, 无疑是一本很有价值的参考工具书。此书的翻译出版, 必将对我国的热释光剂量学的研究与推广使用作出贡献。

译 者 的 话

自 60 年代初期以来, 热释光剂量学已得到了迅速的发展, 现已成为辐射剂量学领域内的一个新的重要分支。

目前, 热释光剂量测量技术已广泛地应用于个人剂量测量, 环境监测, 放射治疗, 考古, 地质研究, 生物学, 生态学, 生物化学以及核物理等领域。

本书系欧洲的著名热释光剂量学专家所著, 反映了当代欧美热释光剂量测量技术的最新研究水平与实际应用水平, 是一本很有价值的参考书, 可供我国读者借鉴。

本书的序言部分及一、二、三、四、十三章由张彤译, 五至六章由华钟亮译, 七至十章由李湘葆译, 十一至十二章由朱中梅译, 十四至十六章由何礼江译, 十七至二十章由高钧成译。全书由张彤统稿。

鉴于译者水平有限, 译文中难免出现不妥甚至错误之处, 恳请读者批评指正。

译 者 1985.7.

序 言

随着核能应用，特别是核能生产的日益发展，越来越需要各种用途的辐射探测与剂量评价技术。环境剂量监测和人员剂量测定就是其中的两个应用领域。这两种剂量测量对于确保居民及每一个辐射工作者的安全都是很重要的。此外，这两种剂量监测对发展核能所引起的法律问题也具有极为重要的意义。

近几十年以来，已经研制出了许多辐射探测器及测量装置，而且，有些探测器和测量装置至今仍被用于对环境及人员的剂量监测。其中的一种就是根据某些材料在受到辐照后加热发光的原理制成的，这种技术就叫做热释光剂量测量技术。由于此种技术简单，便于自动控制，所以，对此种剂量测量技术进行了大量的研究与开发工作。因此，这种技术现在除应用于核防护以外，还广泛地应用于其他领域。

此项技术的研究发展成果已在各种科学杂志、各种会议录（例如，于1965、1968、1971、1974和1977年分别在Palo Alto、Gathinburg、Risö、Krakow与São Paulo召开的国际发光会议的会议录）中、某些有关辐射防护和固体剂量学的书籍以及由J.R.Cameron, N. Suntharalingam和G.N.Kenney编写的有关该项技术的书目志（由威斯康辛大学于1968年出版，书名为Thermoluminescent Dosimetry）中发表。

据该书目志的作者说，其目的在于“广泛地向读者介绍此种技术，提供大量的有关此项技术的仪器，磷光体特性及其应用方面的知识”。

多年以来，人们把这本书认为是一本有关热释光技术的标准参考书。因此，该领域的几乎所有学生和初学者都使用这本书。但是，近年来，日益感到需要该书的最新修订版本。遗憾的是，这样的新版本至今尚未问世。

有鉴于此，设在意大利伊斯普拉的欧洲共同体委员会的联合研究中心便产生了一个想法：希望通过举办一个讲习班来搜集热释光剂量学领域内的全部可以获得的资料。

于是，在联邦德国吉森贾斯特斯-利比希大学的第一物理学院（I Physikalisches Institut of Justus-Liebig-Universität, Giessen）的合作之下，该联合研究中心的教育训练机构便于1977年11月14日至18日举办了一个这样的讲习班。该学院从建立之日起便致力于研究热释光现象并从事热释光剂量技术的开发工作。直到现在，该学院仍在积极从事热释光剂量技术多方面的研究工作。有13名在热释光剂量学领域内的杰出的专家愿意在讲习班上讲授该领域内的最新知识。这个讲习班办得很成功，以致决定还要再次举办这样的讲习班。其目的在于充实和完善所用的讲稿，以便可供以后出版。第二期讲习班只对教学计划作了少许改动，补充了一些在第一期讲习班时所遗漏了的内容，以便使所讲授的内容更加充实和完善。第二期讲习班是1979年11月12日至16日在意大利的伊斯普拉的联合研究中心举办的。所讲授的内容似乎值得向没有参加过这期讲习班的更广大的读者推荐。

本书收集了这两期讲习班所用的全部讲稿，但对原来的顺序作了某些改动，以避免内容上的过分交叉重复。尽管如此，仍然不可能完全避免交叉重复现象。交叉重复是并不令人满意的，但为了保持每一章的独立性，也只好如此。在某些章节中，引用了一些交叉参考文献

献，其目的在于尽量向读者提供热释光剂量学方面的更多的知识。

本书在第一章中讲述了热释光剂量学的发展史。在这一章中，读者可以看到，热释光是早就为人们所知的一种普遍现象。例如，在 3 000 种矿物中，有 3/4 的矿物均具有热释光效应。实际上，热释光作为一种测量照射量或剂量的手段正是从观察许多矿物显示出自然的热释光和已知的锰激活的硫酸钙对紫外线的灵敏性开始的。早在 40 年代末期，在应用热释光剂量仪（大多为军用）的研制方面已进行了大量的工作。到 1950 年，就已发现了许多现在仍在使用的热释光磷光体可以应用于剂量测量之中。到 60 年代，第二代热释光材料便进入了实用阶段，各种各样的市售热释光剂量仪均利用了计算机技术所取得的迅速进展，越来越向高级复杂的方向发展。

在第二章中，将根据普通物理学并借助于固体能带模型，从理论上探讨了热释光现象。

现已表明，即使不作任何假设也可以模拟热释光的强度。但是，重要的热释光材料的其他性质还有待于加以研究，以便获得固体中电子运动过程的完整模型。

第三章主要讲述热释光剂量仪。在热释光剂量研究工作初期所使用的测量各种磷光体热释光的装置是相当简陋的，现已将其发展成十分复杂的带有计算机的热释光读出装置，它们可以同时成百上千的热释光剂量计进行全自动显示和数据处理。此章阐述了热释光读出系统的最重要的通用部件，举了一些市售热释光读出装置的实例，但对电子设备部分并没有进行详细阐述。在此章的末尾附有热释光剂量仪制造厂家的通讯录。

除了某些基本仪器外，热释光剂量研究工作还需要许多诸如粉末分配器，退火架和加热炉等附件，这些都是第四章所要讨论的题目，这将使热释光剂量技术在仪器设备方面的问题得到更加完善的阐述。

第五章将阐述用于剂量计、特别是用于人员剂量计的热释光剂量材料所应满足的一般要求。在此章中，所讨论的其他要求是磷光体的灵敏度，能量依赖关系，衰退特性以及可以获得的重复性等。

在第六章中，将详细论述现有的每一种重要的磷光体。在讲述每一种磷光体的开头，将对其在热释光剂量学领域中的实际作用作一简短的历史评价。在此章中，还将向读者介绍制备磷光体及其随后的热处理知识。将使用特定的模型来解释诸如发光曲线和发射特性等物理性质。此外，还将讨论磷光体的实际的剂量学特性。

第七章的目的是使第六章中所谈到的热释光材料的用户了解热释光剂量技术可能的用途及其限制范围。讲述和分析了使用现有的热释光技术所得到的实验结果，以向读者说明这种技术的误差来源和大小。该章的作者认为，除了热释光对能量和入射辐射的方向依赖关系外，读出装置的性能，读出的几何条件，退火周期以及剂量仪的操作技术都可能是影响实验结果的主要因素。与此同时，为了使热释光剂量测量能获得最大的可靠性，对如何将这些影响因素降低至最小限度提出了种种建议。

第七章的主要目的是使学生们熟悉热释光剂量测量时产生误差的原因，而第八章的目的则是要澄清精确度与准确度之间的差别。举了若干产生误差的例子，并论述了如何用数学方法进行误差分析。

在本书第一部分的结尾，即在第九章中，简述了成功地应用于剂量学领域中的其他固体测量方法。如辐射光致发光、染色效应、照像效应、外电子发射、径迹探测、中子感生缺陷及

闪烁现象等。结果表明, 与其他固体测量方法比较, 热释光剂量测量法是现已发展出来的最佳方法。

总而言之, 在本书的第一部分中, 讨论了正确理解热释光现象、它的适用性及其在剂量测量应用中的种种优点所需要的绝大部分基础知识。

在本书的第二部分中所搜集的资料的目的旨在证明已经或正在对热释光加以成功地应用。人员剂量测量就是热释光的应用领域之一。许多热释光材料对光子探测是近似组织等效的, 具有衰退低而精度高的特性, 还可以使用自动读出系统同时读出多个剂量计, 所有这些都证明了热释光剂量技术具有突出的优点。在第十章中, 讨论了这一应用领域的特殊要求, 给出了热释光剂量计的全面的调研结果以及常规人员剂量监测剂量计的设计, 同时还指出了在这一特殊应用领域的未来发展趋势。

环境监测是热释光剂量学的另一个应用领域, 其重要性正在与日俱增, 在第十一章中将要讨论这个题目。具有低衰退特性、低零点读数和高精度的热释光剂量计远比其他系统更便宜、更适用于监测自然的辐射本底及核设施的短期或长期影响。如果要使热释光剂量计达到高度准确的话, 分别对每个剂量计进行正确的标定是至为重要的。因此, 该章将对剂量计的标定技术作简要论述。

对利用热释光磷光体来测量中子剂量的技术已进行了大量的研究工作。在第十二章中, 将对该项研究工作加以评述。

有关中子与物质的相互作用所涉及的复杂过程的某些知识对于正确理解热释光材料的中子响应是颇为重要的。因此, 在该章中将先讲述有关的中子反应的分类, 讨论监测中子反应所需要的某些参数及该章中所使用的各种术语的定义。然后, 将比前几章更详细地讲述通用的热释光材料对热中子的响应及影响此种测量的种种因素。

讨论了分离混合辐射场中的中子分量的方法以及用磷光体与不发光的 ^6Li 盐混合物产生高的热中子响应的方法。而且还探讨了利用质子辐射体、裂变箔片及减速剂来增加磷光体对中速中子和快中子响应的各种技术。评价了这些技术在剂量学中的实际用途和限制, 探讨了利用中子激活用于治疗工作或放射性事故中剂量测量磷光体的某一组分的可行性。

最后, 讲述了快中子剂量学未来的发展趋势。

在最后三章中, 介绍了一些其他有价值的关于辐照类型或辐照开始时间的知识, 所有这些知识均可以从发光曲线中得到。在所讲授的课程中增加了发光曲线分析的内容, 其目的在于强调这个问题的重要性, 在十三章中复述了发光曲线的分析问题。如该章所述, 借助于发光曲线的分析, 存在着各种各样的分析附加的固有热释光数据的方法。在该章中列举了 5 种分析方法。

在医学领域, 由于热释光剂量法比其他剂量法具有更多的优点, 故在医学界中, 常常更喜欢采用热释光剂量计而不喜欢采用电离剂量计。其主要原因就在于热释光剂量计体积小, 易于将其单个或大量地放入生物的体腔内。热释光剂量计在现代医学中的应用范围将在第十四章中加以论述。

生物学是热释光剂量学从一开始就得到成功地应用的另一个领域。尽管在本书中并没有专门论述这方面的应用问题, 但是, 为了使本书的内容完整起见, 在十五章讲述有关内容时, 也将对这个问题加以简要的论述。

用热释光磷光体测量 $2.58 \times 10^2 \text{ C/kg}$ 以上极高剂量的可能性使人联想到热释光剂量学

在解决技术领域（材料试验，电子元件试验以及辐射消毒等）、化学工业（辐射化学，碳氢化合物裂化、聚合和橡胶的硬化等）以及食品加工工业中的某些剂量测定问题的用途。十六章的目的在于搜集高剂量测量方面的热释光的技术资料。另外，在十六章中，还论述了在某些情况下对高剂量测量可能有用的其他有关磷光体的性质。

在核反应堆工程中，热释光剂量技术有着惊人的广泛的用途。然而，现已发表的有关文章则分散在各种文献资料之中，尚难以为人们所利用。所以，在第十七章中，将对这个问题加以概略地论述。在该章中举了许多实例，例如反应堆屏蔽试验，快堆堆芯测量，反应堆的 γ ——热测量，与反应堆中子有关的问题，累积活度传递研究等等。为了更好地理解在反应堆工程中使用热释光剂量技术的某些特点，补充了三个附录。在这些附录中，阐述了 γ 光子吸收剂量的计算，介绍了空腔电离理论，简述了每吸收一个中子的本征热释光响应及其计算方法。

近年来，出现了诸如放射性碳测定年代，中子活化分析，中子照像技术等一系列新的“原子工具”，这就使考古学家们能够揭示与古代文明有关的新资料。测定年代的方法之所以能与其他方法一样得到发展，其原因就在于这样一个事实：存在着在受到辐照时会显示出热释光的许多材料。例如，象岩石、陶瓷制品、各种矿渣、骨骼和陨石等材料，由于“自然”辐照所致，它们可以获得相当强的热释光。测量这种热释光，即可测出辐照剂量。据此，即可测出所测物体的年代。这就是下两章中所要论述的课题。在这两章中，所讲的内容似乎不太协调。第十八章是1979年的讲习班所用的讲稿，它对此方面的内容进行了概略的论述，可供感兴趣的读者参阅。而第十九章则是1977年的讲习班所用的讲稿，它对各种技术及其有关问题进行了更为详尽的阐述，可供专业读者参阅。尽管这两章在内容上存在着某些交叉和重复，但是，编者并不认为将这两章同时编入本书，使读者得到更多的知识是一个缺点。

本书的最后一章将论述热释光剂量计在剂量标准化及剂量比对中的应用问题，这是热释光剂量计日益广泛应用的一个领域。它之所以被广泛采用，其原因就在于它体积小，易于进行热释光测量，尤其适用于邮寄比对。

尽管在复演讲稿期间，有些作者又把1980年4月1日至4日在法国图卢兹举行的第六届国际固体剂量学会议中的论文列入其讲稿的参考文献之中，但是，大多数作者所引用的参考文献的最晚时间是到1978年中期为止。

所有的作者在编写讲稿时都知道最近已推广采用的由第十届国际计量大会通过的国际单位制，而且也知道这个国际单位制中的某些专用单位名称已在电离辐射和剂量学中开始使用。尽管如此，在本书中仍然保留了诸如伦琴、拉德、雷姆和居里之类的“旧”单位。这是因为，这些单位至今仍被广泛使用，而且还将与新单位一起被继续使用一段时间。仍然保留这些单位的第二个原因是，作者所选用的许多图表都是在前些时候用旧单位绘制的。若想在短时间内使用新单位重新绘制这些图表，则是很不经济的。为了将旧单位换算成新的单位，如库伦每千克($C \cdot kg^{-1}$)，戈瑞(Gy)，西沃特(Sv)和贝可勒尔($C \cdot kg^{-1}$)等，读者可以参考本书的附录。

编者希望向对本教材作出过贡献的所有作者和为本书的出版作出过贡献的所有人士表示感谢。如果他们不应邀编写此教材，如果他们不提供讲稿，这本书是不可能出版的。

编者希望向伊斯普拉联合研究中心的教育训练中心的负责人B. Henry先生（因为他全

力以赴地支持了这两期讲习班和出版这些讲稿）和该讲习班的全体秘书（因为他们协助组织了这两期讲习班）表示感谢。

我们还希望对 Adam Hilger 有限公司，特别是该公司的责任编辑 K.J.Hall 先生表示谢意，因为他们接受了出版这两期讲习班的教材并印制了这本可望向全世界发行的书。

意大利伊斯普拉

1980.5

Martin Oberhofer

Arthur Scharmann

目 录

序 言	(I)
-----------	-------

第一篇 基础知识

第一章 历史	(1)
第二章 理论	(7)
2.1 前言	(7)
2.2 辐射激发	(7)
2.3 热激发与复合	(11)
2.4 唯象学分析	(13)
2.5 动力学模型	(15)
2.6 陷阱参数的确定	(17)
2.7 其他参数	(19)
2.8 计算机模拟	(22)
2.9 与实验结果的比较	(24)
2.10 结论	(27)
第三章 仪器	(30)
3.1 前言	(30)
3.2 加热系统	(31)
3.3 光探测系统	(37)
3.4 专用器材	(40)
3.5 热释光探测器读出装置和读出系统	(42)
3.6 热释光探测器读出装置制造厂家的通讯录	(51)
第四章 附属仪器	(53)
4.1 前言	(53)
4.2 加热盘	(53)
4.3 气流加热	(55)
4.4 参考光源	(55)
4.5 粉末分配器	(56)
4.6 机械镊子	(58)
4.7 真空镊子	(59)
4.8 筛子	(59)
4.9 超声波清洁器	(60)
4.10 退火炉	(60)
4.11 退火支架	(61)
4.12 辐照器	(62)
4.13 文献	(63)

第五章 热释光材料的一般特性	(65)
5.1 前言	(65)
5.2 线性	(65)
5.3 对光子的响应	(67)
5.4 对 β 射线的响应	(69)
5.5 对中子的响应	(70)
5.6 衰退	(71)
5.7 退火程序	(72)
5.8 稳定性及重复性	(73)
5.9 剂量率响应	(74)
5.10 摩擦热释光(或摩擦发光)	(74)
第六章 主要热释光材料的制备及其特性	(76)
6.1 前言	(76)
6.2 氟化锂	(76)
6.3 硼酸锂	(82)
6.4 氧化铍	(85)
6.5 氟化钙	(86)
6.6 硫酸钙	(89)
6.7 氧化铝	(91)
第七章 操作	(97)
7.1 前言	(97)
7.2 影响精确度的参数	(97)
7.3 结论	(109)
第八章 热释光剂量计测量工作中的精确度和准确度	(111)
8.1 前言	(111)
8.2 定义	(111)
8.3 随机不确定度和系统不确定度的估计方法	(111)
8.4 热释光剂量测量的误差来源	(112)
8.5 热释光测量的精确度	(113)
8.6 热释光测量的准确度	(115)
8.7 低剂量测量的准确度	(116)
第九章 其他固体剂量测量法简论	(117)
9.1 前言	(117)
9.2 辐射光致发光(RPL)	(118)
9.3 变色效应	(120)
9.4 照相过程	(121)
9.5 受激外电子发射	(122)
9.6 径迹探测	(123)
9.7 硅二极管阻抗的变化	(124)
9.8 闪烁剂量计	(125)
9.9 结论	(126)

第二篇 应 用

第十章 热释光剂量计在个人剂量测量中的应用	(127)
10.1 前言	(127)
10.2 性能要求	(128)
10.3 探测器材料及其特殊要求	(130)
10.4 个人剂量计系统	(135)
10.5 特殊应用	(140)
10.6 未来的发展趋势	(148)
第十一章 热释光剂量测量系统在环境监测中的应用	(153)
11.1 前言	(153)
11.2 性能要求	(153)
11.3 市售热释光剂量计的性能	(154)
11.4 对批量剂量计及读出器的标定技术	(168)
11.5 测量的重复性及总不确定度	(171)
11.6 现场照射量的判读	(174)
11.7 实际应用	(175)
第十二章 热释光材料在中子剂量测量中的应用	(180)
12.1 前言	(180)
12.2 中子及剂量测量	(180)
12.3 热中子探测器	(183)
12.4 中能中子和快中子剂量计	(190)
12.5 发展前景	(198)
第十三章 发光曲线分析	(205)
13.1 前言	(205)
13.2 记录发光曲线	(205)
13.3 中子剂量当量的测量	(206)
13.4 β 射线测量	(209)
13.5 衰退校正	(210)
13.6 辐照后时间的测定	(212)
13.7 核定数据	(212)
第十四章 热释光剂量在医学中的应用	(213)
14.1 放射治疗测量	(213)
14.2 诊断放射学测量	(213)
14.3 临床应用中选择剂量计的诸种因素	(214)
14.4 放射治疗吸收剂量的测量	(219)
14.5 放射治疗中应用热释光剂量计的实例	(221)
14.6 放射诊断学中的吸收剂量测量	(222)
第十五章 热释光剂量计在生物学及其有关领域中的应用	(226)
15.1 前言	(226)
15.2 动物实验	(226)
15.3 骨骼的剂量测量	(227)

15.4 光子辐射品质的测量	(228)
15.5 毒性测定	(229)
15.6 普通生物学和生物化学	(229)
15.7 生态学	(229)
15.8 动物习性研究	(230)
第十六章 用热释光剂量计测量高能光子的剂量	(232)
16.1 前言	(232)
16.2 氟化锂	(233)
16.3 硼酸锂	(240)
16.4 氟化钙	(241)
16.5 其他热释光剂量计中的磷光体	(241)
16.6 结束语	(243)
第十七章 热释光剂量计在反应堆工程中的应用	(246)
17.1 前言	(246)
17.2 热释光在反应堆环境中的应用的调研	(247)
17.3 在中子剂量测量中的应用	(255)
17.4 环境监测	(258)
17.5 其他应用	(259)
附录 17.1 γ 光子吸收剂量的计算	(259)
附录 17.2 空腔电离理论	(262)
附录 17.3 每吸收一个中子的本征热释光响应	(265)
第十八章 评热释光剂量计在年代测定中的应用	(272)
18.1 前言	(272)
18.2 年代测定方法	(272)
18.3 年代测定技术的应用	(276)
18.4 结论	(278)
第十九章 热释光年代测定技术及其存在的问题	(286)
19.1 前言	(286)
19.2 应用	(289)
19.3 最新研究成果与存在的问题	(292)
第二十章 热释光剂量计在剂量标准化和比对中的应用	(304)
20.1 前言	(304)
20.2 标准传递	(304)
20.3 直接比对方法	(305)
20.4 邮寄比对的用热释光剂量计的特征	(306)
20.5 邮寄比对实例	(307)
20.6 结论	(309)
附录: 新的辐射学单位 (SI 单位) 及其与原用单位的换算关系	(311)

第一章 历史

A. Scharmann

即使是史前时期的山洞人，也许就已观察到了一种肯定被中世纪的炼金术士所知道的一种效应：某些矿物（如萤石）在黑暗中被加热时会产生一种瞬时的发光现象^[1]。今天，人们把这种现象叫做热释光现象，这种现象是现代累积剂量测量的最为重要的方法之一的基

础。现代化学的奠基者之一 Robert Boyle 爵士就曾经描述过这种现象。1663 年 12 月 28 日，他向伦敦皇家学会报告说，当他在他的卧室的黑暗处加热一颗钻石时，他观察到这颗钻石发出了奇怪的“微弱的闪光”。他说，当我睡觉时把这颗钻石放在我的身边时，我也使它发出了某种微弱的闪光，而且我还把它放在我的裸露的温暖的身体上呆了好大一会儿。Boyle 还作了一些其他钻石的发光试验，如将一颗钻石与其他物体摩擦，把钻石放在烛光或一块热铁附近等等。

1705 年，Oldenberg^[2]描述了矿物萤石的热释光现象。此外，他还研究了此种矿物磷光体的其他性质。1830 年，Pearsall^[3]描述了在加热时能发出磷光的矿物的电学效应。

1883 年，Henri Becquerel^[4]在测量红外光谱时，也发现了热释光现象。他说：“将预先经光照过的磷光物质置于黑暗处加热，便会出现更强的磷光。随后，这种磷光便迅速消失”。这就意味着，如果你在黑暗中加热预先受过光照的磷光体，你就可以看到这种磷光会越来越亮，然后迅速消失。在这项研究工作中，他注意到红色光及红外线辐照的影响都是相同的，即它们可以使物体的温度升高。早在 1848 年，他的父亲 E. Becquerel^[5]就已经发现了这种辐射的一种新的性质：红色光或红外线可以破坏这种磷光。

他后来所做的实验对这些结果提供了解释。他解释说，由于红色光或红外线辐射的影响，这种原来贮存于物体中的光会以发光形式十分迅速地释放出来。因此，再也看不见物体通常缓慢衰退的那种磷光了。

早在 1800 年，William Herschel^[6]就发现了光谱中存在着一部分可以导致物质温度上升的光谱的这一事实。他是在进行下述实验时发现这一事实的：他使阳光投射到温度计的水银球上后发现，当水银球处于光谱的不同区域时，其温度上升也随之不同。蓝色光谱只能产生很小的热效应。但是，当水银球移至红色光谱区时，这种热效应就显著得多。即使在可见光范围以外，他也能观察到热效应的最大与最小值。

由此，人们便知道，在太阳的红色光谱以外，还存在着一个用肉眼看不见的光谱区。人们还对太阳光谱的另一端进行了研究。由于另一端的太阳光线可以使银盐还原，从而发现了紫外线 (Ritter, Inglefield, Wollaston)。

自从 1883 年 Becquerel 第一次公布了他的发光现象的论文以后，已有好几个研究人员（大多是物理学家）把他们的整个科学生涯都奉献给了“荧光”和“磷光”的研究之中^[7]。这两种光的差别在于其光发射的衰退特性不同。荧光的寿命短，而磷光的余辉则衰退得很缓慢。

在阴极发光（用阴极射线照射所激发的光）、场致发光（用电场激发的光）、化学发光、生物发光、摩擦发光（这种发光是由于机械应力的激发所致）以及光致发光（这种发光是吸收光激发所致）领域都已进行了大量的研究工作。

这些发光现象的共同点是：

- (1) 存在着原子、分子或中心被激发至高能态的某种过程；
- (2) 经过一定的时间以后，由于发射出一个具有适当能量的光子又辐射跃迁至基态。

早在 1895 年，在德国 Erlangen 的两位科学家 Wiedemann 和 Schmidt⁽⁸⁾就已使用热释放贮存的辐射感生荧光（热释光）这一物理过程来探测电离辐射了。他们用阴极射线照射了大量的矿物和无机物后发现，当在黑暗中加热天然的萤石和锰激活的氟化钙时，它们都能发出特别强的光。而且，即使将它们保存数周以后，原来贮存的发光能力也没有丝毫的衰退。在固体剂量学中，至今仍采用这两种物质作为热释光磷光体。

同年，Röntgen⁽⁹⁾宣布他发现了 X 射线，甚至在他第一次发出的初步通讯报告⁽¹⁰⁾中，他就报道了照像底片对这种新射线的灵敏度。X 射线可以使某些物像在底片上定像，因此可以更好地探测被遮盖的物体。“即使在明亮的房间里，你也可以使一块用纸包着的照像底片曝光”。就定量测量而言，他说：“为了得到透射与吸收层厚度之间的关系，我用锡箔纸（逐渐增加锡箔纸的层数）包着的照像底片进行了大量的曝光试验”。

正如事实所表明的那样，他最先测量了 X 射线对照像感光乳剂的影响。此外，他还报道了 X 射线对热释光的影响。1925 年，美国瓦萨大学（Vassar College）的 Wick⁽¹¹⁾也描述过 X 射线具有产生和改变热释光的作用。当他用 X 射线照射许多物质时，他发现这些物质的热释光均会发生显著变化。某些本来并不显示出自然的热释光的材料在受到 X 射线的激发以后，会成为热释光材料。他还发现，X 射线所照射过的材料一般会比同种材料在更低的温度下发出热释光，而且其热释光的强度也高于同种材料的自然热释光强度。

现在，人们已经知道，就导致热释光的亚稳态的稳定性而言，凡是从亚稳态释放出载流子所需能量越高的系统，其热释光的亚稳态就愈为稳定。当用比较低的热能就足以释放出这种载流子，即当所观察到的最高温度接近于激发温度时，由于载流子长期处于激发温度下，在此最高温度下的载流子也可能会提前释放出来。因此，在随后的发光曲线中，就不可能观察到这种最高温度。但是，如在激发以后就立即进行热释光实验，则可以测量出这种最高温度。Wick 虽然观察到了这种效应，但他并没有对此作出任何解释。在 1928 年，他和他的同事 Slattery⁽¹²⁾报道，他们进一步地测量了预先受到 X 射线所激发的合成材料的热释光。

用现代观念所进行的第一次热释光测量是由维也纳 Prizibram 学院的 Urbach 和 Frisch⁽¹³⁾进行的。Urbach⁽¹⁴⁾在 1930 年描述了碱金属卤化物的发光现象。他除了谈到了其测量结果之外，还报道了他的第一次理论研究的成果。1945 年，Randall 和 Wilkins⁽¹⁵⁾，1948 年 Garlick 和 Gibson⁽¹⁶⁾均曾先后发表了计算模拟发光曲线的理论，这种理论至今仍被用以估计俘获参数。这些理论均将在第二章中加以详细讨论。

直到那时为止，人们还几乎没有把热释光剂量法应用于剂量测量之中。当时，胶片剂量计在剂量学领域内占据着统治地位。最初，照像剂量测量主要应用于解决医学剂量学中所遇到的问题，而很少应用于放射性防护之中。其原因是当时对放射性防护工作还不够重视，可以得到的照像材料的灵敏度又太低，无法对当时所使用的低剂量进行探测。1922 年，Behnken⁽¹⁷⁾的确曾试图利用荧光箔片来提高胶片的辐射效应。但是，他发现，由于光对整个照像

乳胶的密度都有影响而使他长期未能成功。

1926年, Quimby^[18]利用照像法在辐射实验室中研究了散射辐射和次级辐射。1928年, 由于人们对从事辐射研究工作的人员的安全越来越表示关注, 于是, Barclay 和 Cox^[19]便建议将这种方法用于个人剂量测量之中。1929年, Eggert 和 Luft^[20,21]设计制造了一种用几种金属过滤片制作的可以挂在辐射工作人员身上的徽章式剂量计, 这种剂量计是用已知的辐射剂量标定的。他们把这种剂量计称为“胶片剂量计”。Bouwers 和 Van Der Tuuk^[22]后来又用不同的金属过滤片改进了 Eggert 和 Luft 的剂量计。这样, 便开始把照像底片应用于个人放射性防护之中。

第二次世界大战以后, 随着各种辐射源以及民用和军用反应堆的迅速增加, 一些有远见卓识的专家便很快意识到照像乳胶的特性是很难满足大规模长期使用的剂量计的要求的^[1], 其主要理由是照像乳胶存在着种种固有的问题。例如: 具有很强的能量依赖性(胶片剂量计对 40 keV 的 X 射线的灵敏度大约是对 γ 辐射的灵敏度的 20—25 倍, 而金属过滤片又不能完全弥补这种能量依赖性所存在的问题。), 在高温高湿下具有明显的衰退特性; 对光、压力和其他化学品的干扰太灵敏, 寿命短, 剂量范围及灵敏度均有限, 重复性差, 需要相当复杂的具有显影、定影和冲洗处理设备的暗室以及存在着许多潜在的误差因素等等。

为了解决这些问题, 在 40 年代末期, 尤其在美国, 便开始进行积极的探索工作, 以便研制出更好的适用于大部队使用的剂量监测器材。随后, 便发展出了用银激活的磷酸盐玻璃制作的辐射光致发光剂量计(Weyl 等^[23]和 Schulman 等^[24])。这种玻璃剂量计后来成为首批大量生产的固体剂量测量器材, 仅在美国海军之中, 就使用了 100 多万个这样的剂量计(Schulman 等^[25])。在 50 年代初期, 人们就已经发现了现在仍在使用的的大多数热释光磷光体, 而且当时就已有有人认真地建议将其应用于剂量测量之中。例如, Daniels^[26]建议采用 LiF, Kossel 等人^[27]建议采用 CaSO_4 , Ginther 和 Kirk^[28]建议采用 CaF_2 等。

将热释光磷光体应用于剂量测量之中的想法渊源于两个方面^[7]:

(1) 自本世纪初以来, 一直在研究各种材料的自然热释光, 这种研究工作大部分是在欧洲进行的。大约研究了 3000 种矿物, 发现其中 75% 的矿物具有热释光现象;

(2) 在本世纪初就已经知道, 可以用锰激活的硫酸钙 ($\text{CaSO}_4 : \text{Mn}$) 对紫外辐射进行定量测量。最初, 用肉眼估测了经紫外线照射后再加热的 $\text{CaSO}_4 : \text{Mn}$ 所发出的绿色光。后来, 又使用了光电倍增管来测量这种磷光体。随后, 又发现了可以用这种方法来测量 X 射线。1951 年, Purcell 等人^[29]报道了这种方法的实际应用问题。在 1948 年 11 月 18 日和 1949 年 2 月 17 日, 曾两次用 V2 火箭把 CaSO_4 和 MnSO_4 磷光体分别送至 90 和 79 英里的高空, 然后, 将其暴露于阳光之下大约达 3 分钟之久。在这些磷光体中, 一部分是裸露的, 而另一部份则是用过滤材料 CaF_2 、LiF 和 Be 覆盖着的。当它们返回地面以后, 曾分别将其加热并用光电倍增管测量了它们的热释光。观察到了每种磷光体的发光曲线并记录了它们的发光强度。用过滤材料 Be、 CaF_2 和 LiF 覆盖着的磷光体的发光强度大约分别是裸露的磷光体的发光强度的 1/10, 1/3 和 1/2。这些磷光体(包括覆盖着的磷光体)产生热释光的这一事实正是太阳光谱中存在着高能光谱区的证据。在这些磷光体受照射的高空, 甚至存在着 X 射线范围的射线, 这一事实已由 Be 覆盖着的磷光体发出的热释光所证实。

Kossel 等人^[27]还对 $\text{CaSO}_4 : \text{Mn}$ 进行了某些基础研究工作。1954 年, 他们报道了对生物体中的辐射场进行同时剂量测量的发展情况。这些研究工作是在 Bickenbach (他当时是