

сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

3398/83

24/6-83

16-83-212

Г.Я.Касканов, М.М.Комочков,
М.Г.Гелев,* С.М.Леви,* М.А.Радичева*

ДОЗИМЕТРИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ
ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ДЕТЕКТОРОВ
НА ОСНОВЕ ЛЮМИНОФОРА $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$
И СМЕСИ $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + {}^6\text{LiF}$

* ИЯИЯЭ БАН /София/

1983

За последние годы в дозиметрии ионизирующих излучений одними из наиболее перспективных считаются термолюминесцентные детекторы /ТЛД/ на основе фосфоров $\text{CaSO}_4:\text{Dy}(\text{Tm})^{1,2/}$. Эти фосфоры обладают небольшим спадом запасенной информации /3% за месяц/ и чувствительностью, в ~30 раз большей, чем у люминофора LiF , небольшой триболоминесценцией /1/30 от триболоминесценции фосфора LiF / и хорошей стабильностью свойств^{2/}.

В настоящей работе представлены результаты исследований дозиметрических характеристик ТЛД, изготовленных сотрудниками Лаборатории радиационной дозиметрии ИЯИЯЭ Болгарской АН из термолюминофора $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ и ^6LiF ^{3/}.

Эти детекторы выполнены в виде диска диаметром $\varnothing = 5$ мм и состоят из 20 мг порошка люминофора $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ /или из смеси люминофора $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ и ^6LiF / и связующего/кремнеорганический термостойкий лак/, нанесенных на подложку в виде тарелочки из алюминированной фольги толщиной 0,15 мм. Общая толщина детектора составляет около 1 мм, а масса - около 30 мг.

Перед облучением в поле ионизирующего излучения ТЛД $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + ^6\text{LiF}$ одновременно отжигали при температуре $T = /400 + 10/^\circ\text{C}$ в течение 5 мин с последующим охлаждением до комнатной температуры вместе с кассетой, представляющей из себя алюминиевую пластинку толщиной 1,5 мм. Такой режим термической обработки детекторов подобран экспериментально и диктуется свойствами как самого люминофора, так и примененного термостойкого клея.

Термолюминофоры LiF TLD-100, которые использовали как тестовые, перед облучением в поле ионизирующего излучения отжигали в кассете из нержавеющей стали, помещаемой в термостат при температуре $T_1 = /400 + 20/^\circ\text{C}$ в течение 1 часа. После этого кассету с детекторами извлекали из термостата, помещали в радиатор из дюралюминия и охлаждали в течение 30 минут до комнатной температуры. Затем вновь помещали в термостат при температуре $T_2 = /100 + 2/^\circ\text{C}$ и отжигали в течение 2 часов.

После такой термической обработки в тот же день проводили одновременное облучение всех детекторов в поле гамма-излучения кобальта-60 на стандартной градуировочной установке при коллиматоре диаметром $\varnothing = 60$ мм или в поле нейтронного излучения $\text{Pu} + \text{Be}$ источника в открытой геометрии. При этом детекторы помещали в алюминиевую кассету с толщиной стенок 2 мм.

Измерения облученных детекторов проводили на следующие сутки на приборе фирмы "Harshaw" моделей 2000А и 2000В, реализующем интегральный метод измерения ТЛ-сигналов. К линейному выходу этого прибора подключали графопостроитель Н306 для записи кривых термического высвечивания /к.т.в./ детекторов.

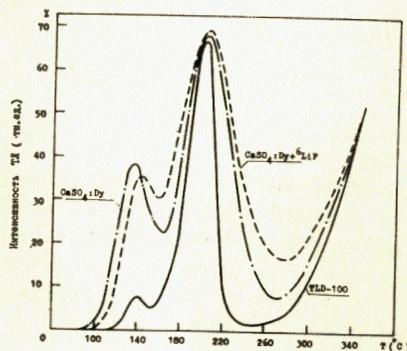


Рис.1. Кривые термовысвечивания термолюминесцентных детекторов LiF TLD-100, $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ / $g = 10^\circ\text{C}/\text{c}$; γ -излучение ${}^{60}\text{Co}$.

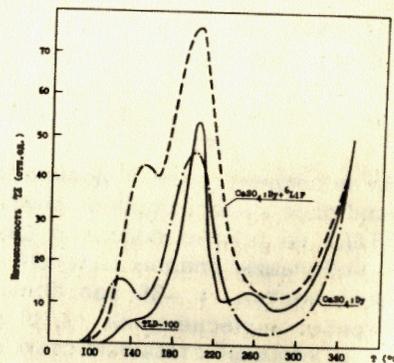
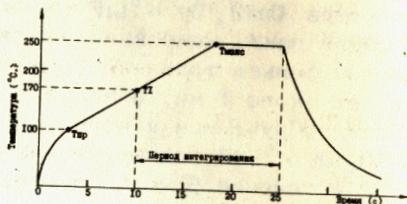


Рис.2. Кривые термовысвечивания термолюминесцентных детекторов LiF TLD-100, $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ / $g = 10^\circ\text{C}/\text{c}$; Pu-Be источник в сфере $\varnothing 150$.

Рис.3. График зависимости температуры планшета прибора от времени цикла измерений.



В процессе измерения измерительная камера блока модели 2000А продувалась техническим азотом со скоростью истечения $1/3 \div 4/$ литра в минуту.

Облученные детекторы LiF TLD-100 перед измерением подвергали стабилизирующему прогреву в алюминиевой кассете, помещаемой в термостат при температуре $T = 100 \pm 2^\circ\text{C}$ на 10 минут.

На рис.1 представлены к.т.в. детекторов TLD-100, $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, записанные после облучения их в поле гамма-излучения кобальта-60 экспозиционной дозой соответственно $0,774 \cdot 10^{-4}$, $0,258 \cdot 10^{-4}$ и $0,774 \cdot 10^{-5}$ Кл/кг. На рис.2 приведены к.т.в. тех же детекторов, полученные после облучения их в поле нейтронного излучения Pu-Be источника, помещенного в полиэтиленовую сферу диаметром $\varnothing = 150$ мм, эквивалентной дозой $D_{\text{ЭКВ.}} = 1 \cdot 10^{-3}$ Зв.

По полученным к.т.в. выбраны режим нагрева планшета прибора и период интегрирования ТЛ-сигнала детектора, которые представлены на рис.3 в виде графика зависимости температуры планшета прибора от времени цикла измерения. В дальнейшем ТЛД $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ измеряли в одном и том же режиме:

- а/ температура предварительного быстрого нагрева $T_{\text{пред.}} = 100^\circ\text{C}$;
- б/ начальная температура интегрирования ТЛ-сигнала $T_1 = 170^\circ\text{C}$;
- в/ максимальная температура нагрева $T_{\text{макс.}} = 250^\circ\text{C}$;
- г/ скорость линейного нагрева от $T_{\text{пред.}}$ до $T_{\text{макс.}} g = 10^\circ\text{C}/\text{c}$;
- д/ продолжительность измерения $t_{\text{цикл.}} = 25$ с.

При измерении TLD-100 применялся следующий режим:

- а/ температура предварительного быстрого нагрева $T_{\text{пред.}} = 100^\circ\text{C}$;
- б/ начальная температура интегрирования $T_1 = 100^\circ\text{C}$;
- в/ максимальная температура нагрева $T_{\text{макс.}} = 230^\circ\text{C}$;
- г/ скорость линейного нагрева от $T_{\text{пред.}}$ до $T_{\text{макс.}} g = 10^\circ\text{C}/\text{c}$;
- д/ продолжительность измерения $t_{\text{цикл.}} = 30$ с.

За период 1980-81 гг с детекторами $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ проведено более 100 циклов измерений с целью определения чувствительности к гамма-излучению кобальта-60 и тепловым нейтронам, линейности показаний детекторов в зависимости от дозы гамма-излучения, минимально измеряемой дозы, фединга и стабильности свойств. При этом через каждые 10 циклов проводились измерения фоновых показаний ТЛД сразу после термической обработки при вышеописанных режимах.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

В табл. 1 приведены средние величины фонового свечения ТЛД LiF TLD-100, $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$; в табл.2 представлены сравнительные характеристики исследованных детекторов, а в табл.3 - средние величины показаний ТЛД до и после 100 циклов измерений при облучении их в поле гамма-излучения кобальта-60 экспозиционной дозой $D_{\text{ЭКВ.}} = 2,58 \cdot 10^{-4}$ Кл/кг.

Таблица 1

Средние величины фонового свечения ТЛД LiF TLD-100, $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$

Детекторы	Результаты измерений ТЛД, нКл	
	в воздушной среде	в азотной среде
LiF TLD-100	/0,005 \pm 0,001/	/0,0031 \pm 0,0006/
$\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$	/0,044 \pm 0,010/	/0,021 \pm 0,004/
$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	/0,018 \pm 0,004/	/0,010 \pm 0,001/

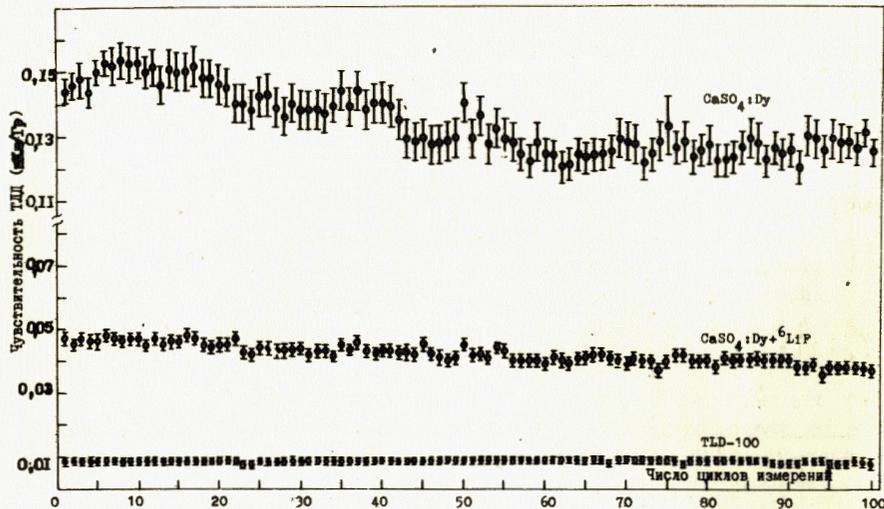


Рис.4. Зависимость чувствительности ТЛД LiF TLD-100, CaSO₄:Dy и CaSO₄:Dy+⁶LiF от числа циклов измерений.

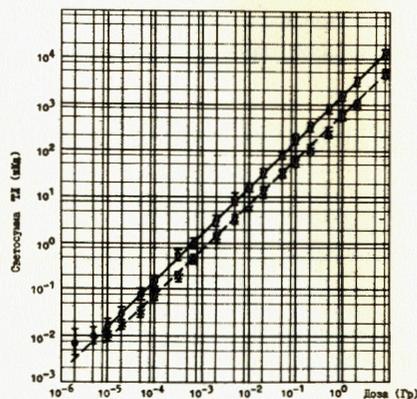


Рис.5. Зависимость запасаемой светосуммы ТЛ от поглощенной дозы.

В таблицах указаны доверительные границы случайной погрешности результата измерения при доверительной вероятности $p = 0,95$. На рис.4 приведена зависимость чувствительности ТЛД TLD-100, CaSO₄:Dy+⁶LiF и CaSO₄:Dy к гамма-излучению кобальта-60 от числа циклов измерений.

На рис.5 представлена зависимость запасаемой светосуммы ТЛ - сигнала детекторов TLD-100, CaSO₄:Dy+⁶LiF и CaSO₄:Dy при облучении их в поле гамма-излучения кобальта-60 от поглощенной дозы в воздухе.

На рис.6 приведена зависимость показаний облученных в поле гамма-излучения кобальта-60 ТЛД LiF TLD-100, CaSO₄:Dy+⁶LiF и CaSO₄:Dy от времени хранения при температуре $T = /20+5/ ^\circ\text{C}$.

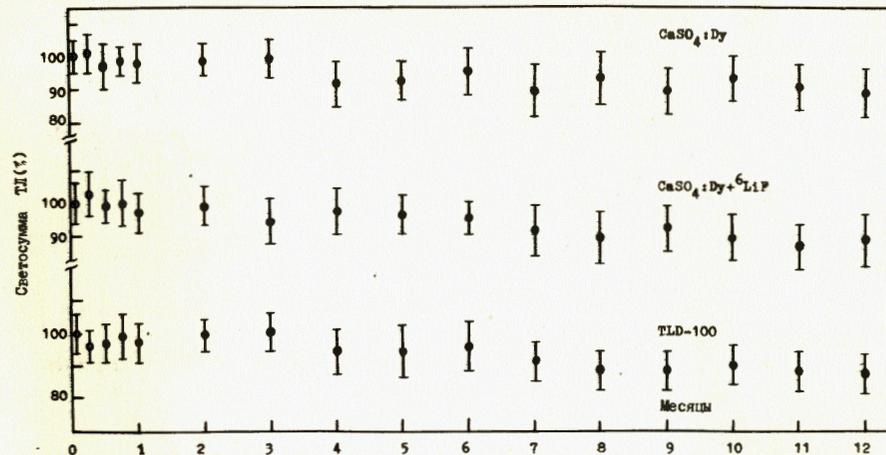


Рис.6. Зависимость показаний облученных термолюминесцентных детекторов из LiF, CaSO₄:Dy+⁶LiF, CaSO₄:Dy от времени хранения в лабораторных условиях /температура $20+5^\circ\text{C}$ /.

На рисунках 4,5 и 6 указаны доверительные границы случайной погрешности результата измерения при доверительной вероятности $p = 0,95$.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ. ВЫВОДЫ

На рис. 1 и 2 видны характерные для данных типов люминофоров максимумы кривой термовысвечивания в области $T_1 \approx 140$ и $T_2 \approx 200^\circ\text{C}$ при облучении их в поле гамма-излучения кобальта-60; а при облучении этих ТЛД в поле тепловых нейтронов на к.т.в. TLD-100 появляется дополнительный пик при $T_3 \approx 265^\circ\text{C}$, что согласуется с литературными данными^{4,5/}.

По данным табл.1 рассчитывалась минимально измеряемая величина дозы ($D_{\text{мин}}$) исходя из предположения, что $D_{\text{мин}}$ есть ожидаемая величина дозы, при которой отклик облученного детектора Q_d превышает отклик фонового детектора Q_ϕ с заранее заданной вероятностью p .

Для нахождения $D_{\text{мин}}$ на основе данных эксперимента вычислялась средняя квадратичная погрешность отдельного измерения по формуле

$$\sigma_\phi = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (Q_\phi^i - \bar{Q}_\phi)^2}{n-1}}$$

где n - число ТЛД в группе, для которых измерено распределение фоновых сигналов.

После этого по заданному значению $p = 0,95$ мы находили значение аргумента интеграла вероятности $\Phi\left(\frac{Q_{\Phi} - \bar{Q}_{\Phi}}{\sigma_{\Phi}}\right)$ и далее вы-

числяли разность $(Q_{\Phi} - \bar{Q}_{\Phi})$. Полагая $\sigma_{\Phi} \approx \sigma_{D_{\text{мин.}}}$, по формуле

$$D_{\text{мин.}} = \frac{2(Q_{\Phi} - \bar{Q}_{\Phi})}{k_{\text{гр.}}} \approx \frac{4\sigma_{\Phi}}{k_{\text{гр.}}}, \text{ где } k_{\text{гр.}} - \text{ градуировочный коэффициент}$$

для данных ТЛД /нКл/Гр/, мы определили минимально измеряемую величину дозы с любым детектором из этой группы.

Для ТЛД-100 после описанного выше стабилизирующего отжига минимально измеряемая доза от гамма-излучения кобальта-60 равна

$$D_{\text{мин.}} = /1 \pm 0,2/ \cdot 10^{-5} \text{ Гр}$$

при измерении детекторов в азотной среде,

$$D_{\text{мин.}} = /2 \pm 0,4/ \cdot 10^{-5} \text{ Гр}$$

при измерении в воздушной среде.

Для детекторов $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ $D_{\text{мин.}}$ соответственно равна

$$D_{\text{мин.}} = /0,6 \pm 0,1/ \cdot 10^{-5} \text{ Гр,}$$

$$D_{\text{мин.}} = /1,4 \pm 0,3/ \cdot 10^{-5} \text{ Гр;}$$

а для детекторов из люминофора $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ $D_{\text{мин.}}$ составляет:

$$D_{\text{мин.}} = /0,046 \pm 0,005/ \cdot 10^{-5} \text{ Гр,}$$

$$D_{\text{мин.}} = /0,18 \pm 0,04/ \cdot 10^{-5} \text{ Гр.}$$

Данные табл.2 показывают, что чувствительность ТЛД $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ к гамма-излучению кобальта-60 выше в 16 раз по сравнению с чувствительностью ТЛД-100, что ниже величин, приводимых в литературе^{/2/}, а для $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ она равна $/4,77 \pm 0,17/ \cdot 10^{-2}$ нКл/Гр и выше в 5 раз по сравнению с чувствительностью ТЛД-100.

Чувствительность к тепловым нейтронам /Pu-Be источник в полиэтиленовом шаре диаметром 150 мм/ равна $/245 \pm 9/ \cdot 10^{-2}$ нКл/Зв, что в 13 раз выше по сравнению с чувствительностью ТЛД-100 в таких полях излучения.

Разброс чувствительности детекторов при выбранном режиме термической обработки не превышает +10%.

Из рассмотрения рис.4 и анализа данных табл.3 следует, что детекторы выдерживают 100 и более рабочих циклов и при этом их чувствительность уменьшается всего на 15-20%, что согласуется с литературными данными.

Из рис.5 следует, что в исследованном диапазоне поглощенных доз $/0,2 \div 800/ \cdot 10^{-2}$ Гр дозовая зависимость исследуемых детекторов $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ линейна.

Таблица 2

Сравнительные характеристики ТЛД LiF ТЛД-100, $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$ и $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$

Детекторы	: Размеры, мм	: Масса, мг	: Средняя чувствительность	
			: гамма-излучение, нКл/Гр	: тепловые нейтроны*, нКл/Зв
LiF ТЛД-100	3,18x3,18x0,89	24,1 ± 0,7	(0,897 ± 0,042) · 10 ⁻²	(18,6 ± 1,4) · 10 ⁻²
$\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$	φ 5, h = 1	25,2 ± 1,2	(4,77 ± 0,17) · 10 ⁻²	(245 ± 9) · 10 ⁻²
$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	φ 5, h = 1	30,5 ± 1,4	(14,40 ± 0,45) · 10 ⁻²	(1,9 ± 0,1) · 10 ⁻²

* Тепловые нейтроны в сопровождении промежуточных и быстрых нейтронов от Pu-Be источника, помещенного в центр полиэтиленовой сферы диаметром 150 мм.

Таблица 3

Средние величины показаний ТЛД до и после 100 циклов измерений, нКл/Гр.

Детекторы	: Число циклов измерения		: Отношение показаний	
	: I	: 100	: TЛД(I) : TЛД(100)	: TЛД(I)
LiF ТЛД-100	(0,904 ± 0,014) · 10 ⁻²	(0,842 ± 0,015) · 10 ⁻²	:	0,93 ± 0,05
$\text{CaSO}_4:\text{Dy} + {}^6\text{LiF}$	(4,770 ± 0,171) · 10 ⁻²	(3,734 ± 0,154) · 10 ⁻²	:	0,78 ± 0,04
$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	(14,4 ± 0,4) · 10 ⁻²	(12,50 ± 0,41) · 10 ⁻²	:	0,86 ± 0,04

Исследование фединга детекторов проводилось при хранении облученных ТЛД в лабораторных условиях /температура $T = /20 \pm 5 / ^\circ C /$ в течение года. Из рис.6 следует, что спад запасенной светосуммы для детекторов из люминофора $CaSO_4:Dy + {}^6LiF$ и $CaSO_4:Dy$ не превышает за 12 месяцев $/10 \div 15 / \%$.

По полученным дозиметрическим характеристикам ТЛД $CaSO_4:Dy + {}^6LiF$ и $CaSO_4:Dy$ удовлетворяют требованиям, предъявляемым к детекторам такого типа в области индивидуальной дозиметрии и радиационного контроля окружающей среды.

ЛИТЕРАТУРА

1. Yamachita T. et al. Health Phys., 1971, 21, p. 295.
2. Бочвар И.А. и др. Метод дозиметрии ИКС. Атомиздат, М., 1977.
3. Радичева М.А. и др. В кн.: Материалы I Национального совещания по проблемам индивидуальной дозиметрии, 19-20 ноября 1981 г. Изд-во ДКНТП, София, 1982.
4. Шварц К.К. и др. Термолюминесцентная дозиметрия. "Зинатне", Рига, 1968.
5. Франк М., Штольц В. Твердотельная дозиметрия ионизирующего излучения. Атомиздат, М., 1973.

Рукопись поступила в издательский отдел
4 апреля 1983 года.

Касканов Г.Я. и др. 16-83-212
Дозиметрические характеристики термолюминесцентных детекторов на основе $CaSO_4:Dy$ и смеси $CaSO_4:Dy + {}^6LiF$

Приведены следующие характеристики этих детекторов: а/ чувствительность к гамма-излучению кобальта-60 и нейтронам широкого энергетического спектра /Pu-Be источник в центре сферы из полиэтилена диаметром 150 мм/; б/ средняя величина фонового свечения; в/ зависимость запасаемой светосуммы ТЛ сигнала от поглощенной дозы гамма-излучения кобальта-60; г/ зависимость чувствительности от числа циклов измерений; д/ зависимость показаний облученных детекторов от времени хранения в лабораторных условиях /фединг/; е/ расчетная величина минимально измеряемой дозы. Приведенные характеристики ТЛД $CaSO_4:Dy$ и $CaSO_4:Dy + {}^6LiF$ сравнивались с аналогичными характеристиками детекторов TLD-100. Все измерения проводились на приборе фирмы Harshaw моделей 2000 (А + В). Экспериментально полученные характеристики ТЛД $CaSO_4:Dy$ и $CaSO_4:Dy + {}^6LiF$ удовлетворяют требованиям в области индивидуальной дозиметрии и радиационного контроля окружающей среды.

Работа выполнена в Отделе радиационной безопасности и радиационных исследований ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1983

Kaskanov G.Js. et al. 16-83-212
Dosimetric Characteristics of Thermoluminescence of $CaSO_4:Dy$ and $CaSO_4:Dy + {}^6LiF$ Detectors

Detector characteristics reported are as follows: a) response to gamma rays (from ${}^{60}Co$) and to neutrons (from Pu-Be source placed in the centre of a polyethylene sphere 150 mm in diameter); b) mean value of zero-dose reading; c) linearity range of the dose-TL signal relationship (for ${}^{60}Co$ gamma rays); d) dependence of the response on the number of measurements cycles; e) fading (under laboratory conditions); f) lowest detectable dose. The characteristics of the $CaSO_4:Dy$ and $CaSO_4:Dy + {}^6LiF$ TLD reported were compared to those of TLD-100. All measurements were performed on a Harshaw (A + B) 2000 reader. The characteristics of the $CaSO_4:Dy$ and $CaSO_4:Dy + {}^6LiF$ TLD experimentally obtained satisfy the requirements for application in the fields of personnel dosimetry and environmental radiation monitoring.

The investigation has been performed at the Department of Radiation Safety, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1983

Перевод авторов.