



**Investigații de termoluminescență pe compuși vitroceramici
 $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ iradiați cu electroni și câmpuri mixte de
neutroni și radiații gama**

Rezumatul tezei de doctorat

Autor:

Barna Biró

Conducători de doctorat:

Prof. dr. Viorica Simon

Facultatea de Fizică, Universitatea Babeş-Bolyai
(UBB, Cluj-Napoca, România)

Institutul de Cercetări Interdisciplinare în Bio-
Nano-Ştiințe a Universitatea Babeş-Bolyai
(ICI-BNS, Cluj-Napoca, România)

Dr. András Csaba Fenyvesi

Institutul de Cercetări Nucleare, Academia
Maghiară de Ştiințe
(HAS Atomki, Debrecen, Ungaria)

Cluj-Napoca 2019

Cuprins

Introducere.....	5
Punctele forte ale tezei (Thesis statements)	7
I. TEORIE	11
1. Fenomenul de luminescență	11
2. Termoluminiscenta materialului vitroceramic	14
2.1 Procedura de iradiere	15
2.2 Procedura de încălzire	16
2.3 Descrierea matematică a fenomenului de termoluminescență	16
3. Fundamente de fizică nucleară în producerea de neutroni cu ciclotronul MGC-20E ...	20
3.1 Producerea de neutroni.....	20
4. Determinarea dozei absorbite de camera de ionizare.....	31
4.1 Teoria cavității Bragg-Gray.....	31
4.2 Determinarea dozei absorbite	31
5. Metoda de activare pentru monitorizarea fluenței neutronilor.....	32
5.1 Formule de bază în activarea cu neutroni.....	33
II. MATERIALE ȘI METODE.....	36
1. Producerea compușilor vitroceramici $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$	36
2. Facilitățile de iradiere utilizate	36
2.1 Sursa de electroni.....	36
2.2 Sistemul de iradiere cu neutroni rapizi (d+Be și d+D)	38
3. Măsurarea semnalelor de termoluminiscentă	42
3.1 Cititorul de luminescență Risø TL/OSL.....	42
3.2 Măsurătorile de luminescență cu cititorul Risø TL/OSL	43
3.3 Metoda de măsurarea a semnalelor de termoluminescență	44
4. Metode de caracterizare a câmpurilor de iradiere.....	45

4.1	Determinarea spectrelor de neutroni.....	45
5.	<i>Echipe, materiale și metode aplicate pentru măsurători dozimetrice în câmpurile mixte n-γ</i>	46
5.1	Camere de ionizare și materiale, dispunerea echipamentului de măsurare	46
5.2	Metoda de determinare separată a dozei absorbite de neutroni și radiație gama cu tehnica camerei de ionizare în câmpuri mixte n-γ	47
6.	<i>Calcularea debitului de neutroni KERMA</i>	53
7.	<i>Monitorizarea debitului fluenței neutronilor printr-o metodă de activare</i>	54
7.1	Probe de monitorizare a activării	54
7.2	Detector coaxial din germaniu de înaltă puritate.....	54
7.3	Metodă de monitorizare a debitului fluenței neutronilor cu detectori de activare	55
III.	<i>REZULTATE ȘI DISCUȚII</i>	64
1.	<i>Investigații TL a vitroceramicii $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ în câmp de particule β^-</i>	65
1.1	Rezultatele obținute fără preîncălzire	65
1.2	Rezultatele obținute după preîncălzire.....	72
1.3	Protocol multi-alicote și doza minimum detectabilă	77
1.4	Protocol uni-alicotă și repetabilitate	79
1.5	Investigarea proprietăților dozimetrice ale vitroceramicii $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$: omogenitatea lotului și stabilitatea semnalului în timp (fading)	82
2.	<i>Studiul materialului vitroceramic $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ în câmpuri mixte n-γ</i>	84
2.1	Câmpul de neutroni al facilității de iradiere d + D	84
2.2	Câmpul de neutroni al facilității de iradiere d + Be	90
2.3	Experimentele de iradiere	92
2.4	Estimarea fluenței neutronilor	100
2.5	Rezultatele măsurătorilor dozimetrice în câmpurile mixte n-γ	104

3. Termoluminescența materialului vitroceramic $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ iradiat folosind o sursă $d+Be$ de neutroni cu spectru continuu și $d+D$ neutroni cu spectru cvasi-monoenergetic.....	108
3.1 Curbele de strălucire TL obținute după iradierile făcute în câmpuri mixte $n-\gamma$	108
3.2 Determinarea semnalelor TL produse de neutroni rapizi și estimarea sensibilității relative a vitroceramicii la neutroni.....	115
3.3 Estimarea răspunsului la doza TL a vitroceramicii $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ în câmpurile mixte $n-\gamma$	121
4. Investigarea TL a vitroceramicii $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ cu particule β^- după iradierea cu neutroni	126
4.1 Iradierii cu sursa $^{90}Sr-^{90}Y$	127
4.2 Curbele de strălucire TL ale materialului vitroceramic și răspunsul TL în funcție de dozele β^- absorbite.....	128
5. Prezentarea generală a dozelor absorbite livrate vitroceramicii cu 30 % mol Y_2O_3 ...	141
IV. REZUMAT ȘI CONCLUZII	143
Mulțumiri	146
Lista publicațiilor	147
Lista conferințelor.....	148
Referințe	149

Chuvinte cheie: dozimetrie prin termoluminescență, dozimetrie cu două camere de ionizare, tehnica de activare nucleară a foliei, vitroceramica $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$, câmp de radiație β^- , câmp mixt de neutroni și radiație gama.

Introducere

Luminiscenta indusă de radiațiile nucleare naturale și artificiale în materiale solide este frecvent utilizată pentru măsurarea dozei de radiații absorbită în diferite medii expuse radiației.

Au fost dezvoltate o serie de metode de dozimetrie și s-au obținut numeroase tipuri de dozimetre individuale [1] [2] [3]. Numărul crescând de aplicații industriale, medicale și agricole bazate pe utilizarea radiațiilor ultraviolete, a razelor X, beta și gama conduce la necesitatea de a căuta constant materiale noi, cu caracteristici dozimetrice adecvate [4]. McKeever în anul 1985 [5], McKeever și colab. în anul 1995 [6] și Furetta și colab. în anul 1998 [7] au publicat o descriere extensivă a proprietăților termoluminiscente necesare pentru un material în vederea unor scopuri dozimetrice.

Compușii dozimetrici, sistemele de sticlă, ceramica policristalină și vitroceramica sunt de mare interes din cauza transparenței lor optice, a obținerii relativ simple, modelării ușoare și stabilității pe termen lung. Au fost publicate mai multe studii în care sunt cercetate proprietățile termoluminiscente ale sticlelor borate (dopate cu elemente alcaline, alcalino-pământoase, metale de tranziție sau pământuri rare), compușilor fosfatici, teluriti și silicați [7] [8] [9] [10] [11] [12] [13] [14] [15] [16] [17] [18] [19] [20] [21] [22] [23] [24] [25]. Materialele luminescente bazate pe silicați ca material gazdă prezintă o stabilitate chimică puternică, rezistență la iradierea cu ioni de mare energie și transmisie ridicată a luminii în vizibil și UV [25]. Din punct de vedere al aplicațiilor dozimetrice este interesant de menționat că în cazul sticlelor și vitroceramicilor borate care au compoziții congruente s-a constatat că vitroceramicile prezintă semnale termoluminiscente (TL) mai definite decât sticla [26]. Acest fenomen merită studiat în cazul altor tipuri de sticlă și vitroceramică.

Scopul prezentei teze a fost studierea termoluminescenței (TL) compușilor vitroceramici $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ expuși în câmp de electroni și în câmpuri mixte de neutroni și radiații gama.

Una din motivațiile studiului meu a fost natura structurii vitroceramice a materialelor $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$. Vitroceramicile sunt sticle parțial cristalizate, care sunt produse prin încălzirea sticlelor deasupra temperaturii lor de cristalizare. În structura vitroceramică, aproximativ 90% din material este în fază policristalină, iar cristalele sunt încorporate în faza amorfă nescristalizată. Dimensiunile cristalelor variază între 0,1 și 1 μm [27]. Materialele vitroceramice prezintă avantaje față de compușii convenționali de sticlă și ceramică, cum ar fi

coeficientul de dilatare termică semnificativ mai mic sau chiar negativ și proprietățile îmbunătățite când sunt supuse stresului mecanic [28]. Adăugarea de ytriu în compoziție îmbunătățește caracteristicile vitroceramice și, de asemenea, crește rezistența sistemului vitroceramic la atacul cu apă [15]. În plus, ytriul îmbunătățește răspunsul TL al materialului (eficiența luminescenței). Ytriul este activator în materialul TL și acționează ca centru luminescent [29]. Studiarea efectului conținutului de ytriu asupra răspunsului TL și a dependenței de doză a răspunsului TL au fost interesante din punct de vedere al aplicațiilor potențiale de dozimetrie ale materialelor. S-au studiat compușii vitroceramici $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ la diferite concentrații de ytriu ($x = 0 \%$ mol, 5% mol, 10% mol, 15% mol, 20% mol și 30% mol). Pe baza rezultatelor noastre, materialul cel mai potrivit pentru dozimetria TL s-a dovedit a fi cel cu compoziția $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ și a fost selectat pentru studii suplimentare [30].

Unul dintre motivele acestui studiu a fost faptul că sticlele fosfosilicate $xP_2O_5(1-x)SiO_2$ sunt utilizate în multe dispozitive microelectronice (de ex. în MOSFET) și în sistemele de fibră optică care trebuie să funcționeze în medii de radiații dure și complexe (de ex. surse de neutroni de fisiune [31], IFMIF-DONES / DEMO / IFMIF-EVEDA [32] [33], ITER [34]). Astfel, este important să se studieze toleranța/răspunsul la radiații a acestor sticlele. Pentru monitorizarea deteriorării prin radiații a acestor dispozitive, dozimetrele termoluminiscente din $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ par să fie o alegere bună [35].

Microsferele activate cu neutroni din acest tip de sticlă au fost considerate ca o nouă generație de purtători potențiali ai radioizotopului ^{90m}Y utilizat pentru aplicațiile de brahiterapie umană. Christie și colab. (2011) [36], Fu și Christie [37] au demonstrat prin simulări dinamice moleculare clasice că adăugarea Y_2O_3 îmbunătățește stabilitatea și durabilitatea structurilor de sticlă.

În mediile de iradiere care includ neutroni, materialele $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ pot deveni radioactive prin diferite reacții nucleare: $^{31}P(n,\gamma)^{32}P$, $^{31}P(n,p)^{31}Si$, $^{31}P(n,2n)^{30}P$, $^{89}Y(n,\gamma)^{90m+g}Y$, $^{89}Y(n,p)^{89}Sr$ and the $^{89}Y(n,2n)^{88}Y$. Dezintegrarea radioactivă a radioizotopilor produși poate conduce la formarea de nuclee de recul (deplasate) de mare energie și puternic ionizate. Aceste reculuri pot induce defecte în structura benzii electronice a materialului. Răspunsul materialului $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ la iradierea cu neutroni (termoluminescență) trebuie să depindă nu numai de fluența neutronilor și doza de neutroni absorbită, ci și de energia neutronilor. Unul dintre scopurile tezei a fost de a obține informații experimentale

privind dependența de energia neutronilor a răspunsului de termoluminescență al materialului $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ [35].

Cercetarea mea a fost efectuată la Facultatea de Fizică a Universității Babeș-Bolyai (Cluj-Napoca, România), la Institutul de Cercetări Interdisciplinare în Bio-Nano-Științe al Universității Babeș-Bolyai și la Institutul de Cercetări Nucleare, Academia Maghiară de Științe (HAS Atomki, Debrecen, Ungaria).

Această teză prezintă fondul și detaliile experimentale ale cercetărilor mele și rezumă rezultatele noi și concluziile investigațiilor mele sub forma a 5 puncte tari ale tezei.

Punctele forte ale tezei (Thesis statements)

- Analiza comparativă detaliată a proprietăților termoluminescente induse de radiații nucleare în tipuri noi de compuși vitroceramici $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ cu diferite concentrații de ytriu ($x = 0, 5, 10, 15, 20, 30$ % mol). Am demonstrat că din cele șase materiale cercetate materialul vitroceramic $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ oferă cel mai înalt răspuns termoluminescent pe unitatea de doză absorbită de la un fascicul de particule β^- și că acest material este cel mai potrivit pentru scopuri de dozimetrie. Această vitroceramică a prezentat structura curbei de strălucire mai puțin complicată. Semnalul dominant la temperatură ridicată prezintă cea mai bună strălucire și cel mai bun grad de liniaritate (de la 0,75 Gy la 9 Gy). Acest material vitroceramic are o omogenitate acceptabilă a lotului, o pierdere de semnal de $\sim 30\%$ după 120 de zile de la iradiere, o repetabilitate bună și doza minim detectabilă este de câțiva mGy [30].
- Am dezvoltat o metodă experimentală de investigare a caracteristicilor răspunsului termoluminescenței materialului vitroceramic $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ expus câmpurilor mixte γ -n. Studiile au fost efectuate folosind spectrul continuu de neutroni de la o sursă d+Be și spectrul cvasi-monoenergetic de neutroni de la o sursă d+D. Am folosit o metodă de activare a neutronilor pentru monitorizarea fluenței neutronilor și o tehnică cu cameră de ionizare pentru măsurarea separată a debitului dozei de neutroni și a radiație gama [35].
- Am validat spectrele de neutroni relevante ale surselor de neutroni d+Be și d+D care au fost obținute fie prin extrapolarea datelor publicate de Brede și colab. [38] (d+Be)

sau interpolarea datelor publicate de Reimer [39] (d+D). Activitatea la saturație a fost calculată (C) utilizând spectrele de neutroni ale surselor de neutroni d+Be și d+D și funcțiile de excitație ale reacțiilor nucleare ale monitorului. Activitatea de saturație măsurată (E) a fost comparată cu cea calculată (C). Rezultatele comparațiilor (C/E) au validat spectrele de neutroni obținute în studiul prezent [35].

- Au fost efectuate estimări pentru sensibilitatea relativă la neutroni a vitroceramicii $30\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot 30\text{P}_2\text{O}_5 \cdot 40\text{SiO}_2$ în cazul spectrului continuu obținut de la sursa d+Be ($E_n = 0-14.5$ MeV) și a spectrului neutronilor cvasi-monoenergetici proveniți de la sursa d+D ($E_n = 12.4 \pm 0.22$ MeV). Rezultatele obținute sugerează că sensibilitatea relativă a vitroceramicii la neutroni depinde de energia neutronilor [35]. Mai mult, în cazul celor două surse de neutroni, rezultatele obținute sugerează că răspunsurile TL ale vitroceramicii urmărite în funcție de dozele absorbite de la neutroni, radiația gama și însumat sunt lineare în limitele de incertitudine a măsurărilor dozimetrice.
- Am studiat efectul posibil de deteriorare a deplasării induse de neutronii rapizi asupra răspunsului TL al vitroceramicii cu 30 % mol Y_2O_3 la iradierea cu particule β^- . În prima etapă, probele neiradiate au fost expuse la radiații β^- și dozele absorbite au fost în intervalul $D_\beta = 0,75 - 1000$ Gy. În a doua etapă, probele preiradiate cu o doză absorbită de neutroni în intervalul $D_n = 80-110$ Gy au fost selectate și expuse la radiații β^- și dozele absorbite au fost în intervalul $D_\beta = 0,75 - 500$ Gy. Au fost comparate rezultatele obținute în cele două cazuri. S-a constatat că proprietățile TL ale vitroceramicii cu 30 % mol Y_2O_3 atât neiradiate cu neutroni cât și iradiate cu neutroni sunt în concordanță în limita de incertitudine a măsurătorilor. Cu alte cuvinte, nu a fost observat niciun efect semnificativ statistic al deteriorării induse de neutroni asupra în proprietăților TL ale materialului.

I. REZULTATE ȘI DISCUȚII

Rezumatul tezei raportează rezultatele obținute prin studierea proprietăților TL ale vitroceramicilor $x\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot (60-x)\text{P}_2\text{O}_5 \cdot 40\text{SiO}_2$ ($0 \leq x \leq 30$ % mol) în câmp de radiații β^- și câmpuri de radiații mixte γ -n. Sunt prezentate următoarele rezultate:

Câmpul de radiații beta (β^-)

- Curbele de strălucire TL și răspunsul la doză în regiunea de doză absorbită de 0,75 Gy-9 Gy au fost măsurate pentru concentrațiile $x = 0\%$, 5% , 10% , 15% , 20% , 30% Y_2O_3 prin protocolul uni-alicotă (fără preîncălzire și cu preîncălzire),
- au fost măsurate răspunsurile la doză ale vitroceramicilor cu 20% mol Y_2O_3 și 30% mol Y_2O_3 în regiunea de doză absorbită de $0,75$ Gy-9 Gy, prin protocolul uni-alicotă și prin protocolul multi-alicotă,
- testul de repetabilitate al vitroceramicilor cu 20% mol Y_2O_3 și 30% mol Y_2O_3 și măsurătorile efectuate prin protocolul uni-alicotă,
- au fost măsurate curbele de strălucire TL și răspunsurile la doză ale vitroceramicii cu 30% mol Y_2O_3 în intervalul de doză absorbită de $0,75$ Gy - 9 Gy (doză mică) și de 15 Gy - 1000 Gy (doză mare), după experimentele în câmpurile mixte γ -n.

Câmpurile mixte gama-neutroni

- validarea spectrelor de neutroni ale surselor de neutroni $d + Be$ și $d + D$,
- rezultatele măsurătorilor dozimetrice în câmpurile mixte γ -n,
- au fost măsurate curbele de strălucire TL ale vitroceramicii cu $x = 30\%$ mol Y_2O_3 ,
- determinarea semnalelor TL induse de neutroni rapizi în vitroceramica cu 30% mol Y_2O_3 ,
- determinarea sensibilității relative a vitroceramicii cu 30% mol Y_2O_3 la neutroni pentru iradierii cu două surse de neutroni diferite,
- determinarea sensibilității relative a vitroceramicii cu 30% mol Y_2O_3 la neutroni în funcție de energia neutronilor,
- am estimat răspunsul TL la doză pentru vitroceramica cu 30% mol Y_2O_3 în funcție de doza absorbită de neutroni, radiație gama și radiație totală.

1. Investigații TL a vitroceramicii $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ în câmp de particule β^-

S-au investigat proprietățile dozimetrice ale vitroceramicilor $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ cu o concentrație variabilă de Y_2O_3 ($0 \leq x \leq 30\%$ mol). Curbele de strălucire TL au fost înregistrate la o viteză de încălzire controlată ($5\text{ }^\circ\text{C/s}$) după iradierea beta ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) atât cu cât și fără aplicarea de tratamente termice. În timpul citirii semnalului TL, proba a fost încălzită la $500\text{ }^\circ\text{C}$. Tratamentul termic a constat dintr-o preîncălzire cu o durată de 10 s la $150\text{ }^\circ\text{C}$ pentru

probele dopate cu 0-15 % mol Y_2O_3 și până la 175 °C în cazul 20 % mol Y_2O_3 și 30 % mol Y_2O_3 . Regiunea de interes selectată a fost de 150–300 °C pentru integrarea semnalelor TL. În timp ce compușii cu concentrație scăzută de Y_2O_3 (0-15 % mol) au prezentat curbe de strălucire slabe, probele $20Y_2O_3 \cdot 40P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ și $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ au fost caracterizate printr-o structură mai puțin complicată a curbei de strălucire și un semnal TL mai luminos (vezi **Figura 1-1**). Picurile curbelor de strălucire sunt plasate în domeniul dozimetric de temperatură (~ 220°C și mai sus).

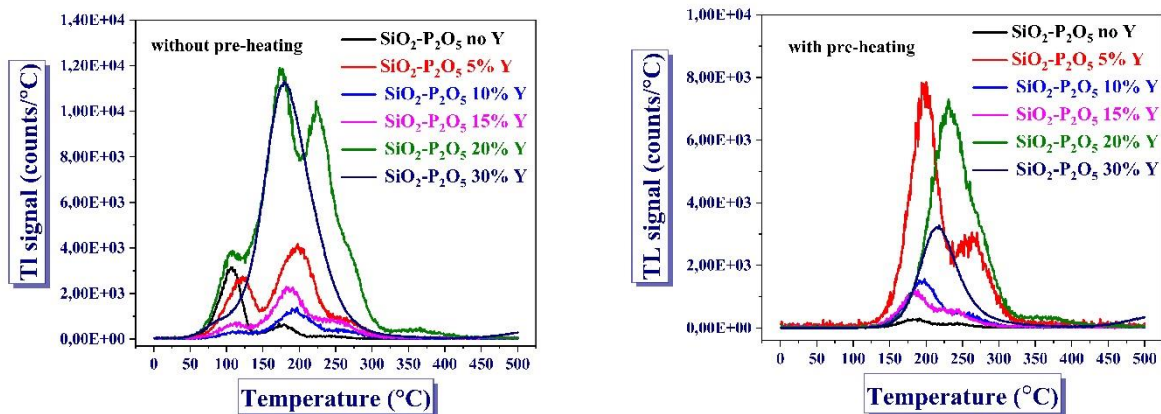


Figura 1-1. Comparația curbelor de strălucire ale vitroceramicilor care au concentrație diferită de Y_2O_3 . Curba de strălucire pentru 30 % mol Y_2O_3 a fost normalizată la 1 mg, în timp ce celelalte curbe de strălucire au fost normalizate la 10 mg.

Când s-a aplicat protocolul multi-alicotă pentru acești ultimi doi compuși, s-a observat o liniaritate ridicată pentru intervalul de doze investigate de la 0.75 până la 9 Gy (vezi **Figure 1-2**). Sensibilitățile obținute pentru 10 mg de material au fost $S = 79596$ cts pentru 10 mg/Gy pentru $20Y_2O_3 \cdot 40P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ și $S = 760478$ cts pentru 10 mg/Gy pentru $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$. În cazul $20Y_2O_3 \cdot 40P_2O_5 \cdot 40SiO_2$, doza minim detectabilă pentru

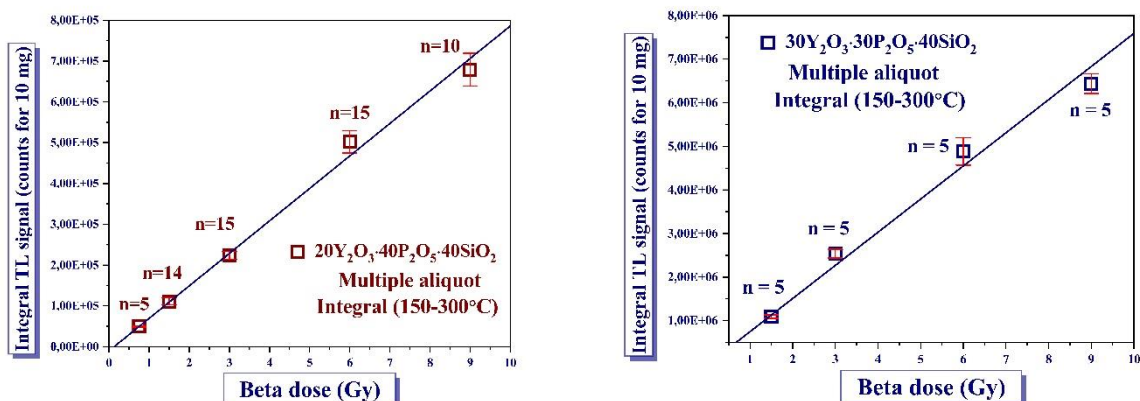


Figure 1-2. Răspunsul la doză al vitroceramicilor cu 20 % mol Y_2O_3 și 30 % mol Y_2O_3 , în funcție de doza absorbită (0,75, 1,5, 3, 6 și 9 Gy). n indică numărul de alicote aplicate pentru fiecare doză absorbită.

măsurători instantanee a fost de 16 mGy, în timp ce pentru $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ s-a obținut o valoare de 4 mGy.

Testul de repetabilitate (vezi **Figura 1-3**) și protocolul uni-alicotă au fost aplicate pentru acești ultimi doi compuși. În cazul vitroceramicii $20Y_2O_3 \cdot 40P_2O_5 \cdot 40SiO_2$, sensibilitatea a crescut până la 46% după zece cicluri de măsurare. În cazul vitroceramicii $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$, a fost observată o desensibilizare, și sensibilitatea a scăzut la 9% după zece cicluri de măsurare (repetabilitate bună). Răspunsul TL a fost liniar în funcție de doza absorbită pentru ambele materiale (vezi **Figura 1-4**). În cazul protocolului uni-alicotă, sensibilitatea medie a vitroceramicii $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ a fost de ~ 650.000 cts pentru 10 mg/Gy. Mai mult, sensibilitatea medie a vitroceramicii $20Y_2O_3 \cdot 40P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ a fost de ~ 76.000 cts pentru 10 mg/Gy. Aceste valori se încadrează 2σ în sensibilitatea medie care a fost obținută cu protocolul multi-alicotă.

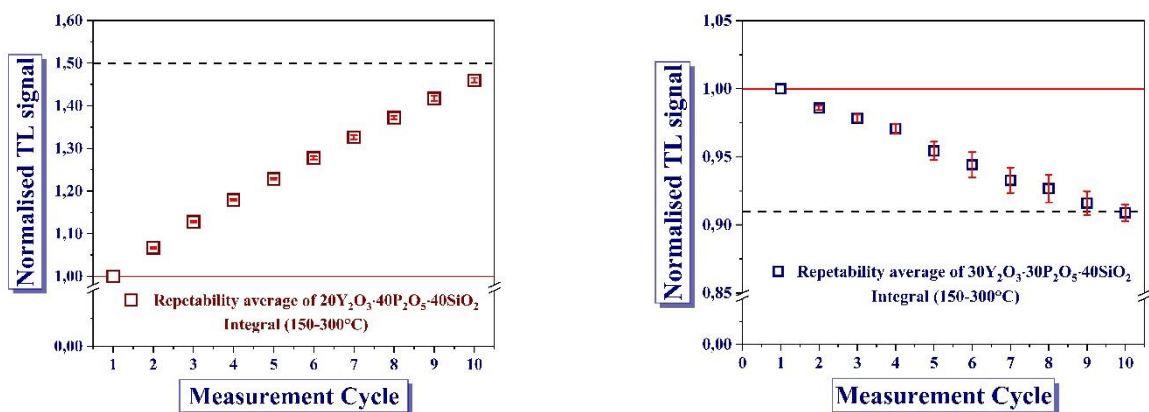


Figura 1-3. Testul de repetabilitate. Doza absorbită a fost 6 Gy.

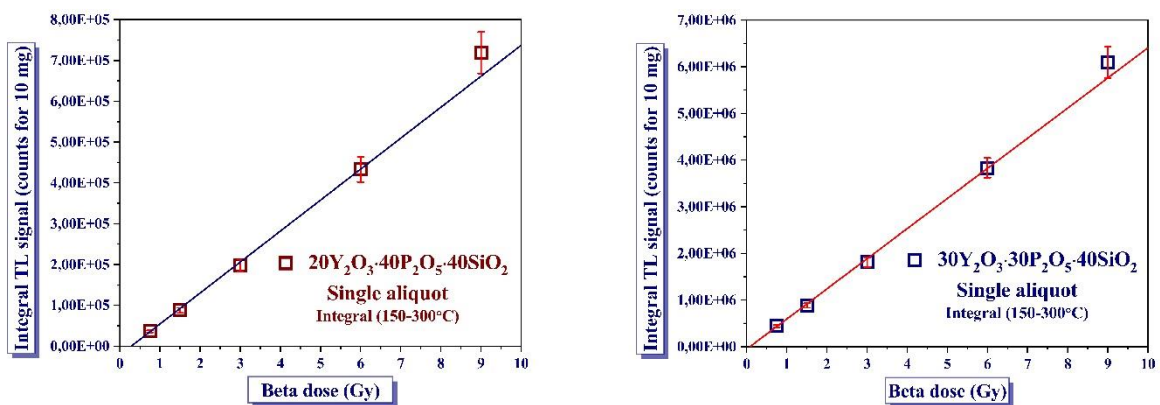


Figura 1-4. Răspunsul la doză ale vitroceramice obținute prin protocolul uni-alicotă.

Pe baza rezultatelor obținute, investigațiile noastre ulterioare s-au concentrat exclusiv pe vitroceramica $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$. Materialul are omogenitate acceptabilă a lotului și stabilitatea semnalului în timp este foarte bună, adică o pierdere de semnal de ~ 30% după 120 de zile de la iradiere.

2. Studiul materialului vitroceramic $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ în câmpurile mixte γ -n

Răspunsul TL al vitroceramicii $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ a fost studiat în câmpurile mixte γ -n ale surselor de neutroni d+D și d+Be la ciclotronul MGC-20E. S-au utilizat spectrul energetic continuu de neutroni de la sursa d+Be ($E_n = 0-14.5$ MeV) și spectrul cvasi-monoenergetic de la sursa d+D ($E_n = 12.4 \pm 0.22$ MeV). Au fost efectuate șase experimente de iradiere. Trei iradieri s-au făcut la sursa de neutroni d+Be. Trei iradieri s-au făcut la sursa de neutroni d+D.

Experimentele de iradiere

Figura 2-1 prezintă schița generală a aranjamentelor de iradiere și a măsurătorilor de dozimetrie la sursele de neutroni. Vitroceramica $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ a fost fixată pe o placă-suport din aliaj AlMgSi. Pentru monitorizarea fluenței neutronilor au fost fixate discuri de aluminiu (Al) și fier (Fe) de înaltă puritate pe partea din spate a plăcii suport. Camerele de ionizare au fost folosite pentru determinarea separată a dozei de neutroni (D_N) și de radiație gama (D_G) în pozițiile de iradiere (SSD) ale vitroceramicii.

Estimarea fluenței neutronilor

Discurile Al și Fe au fost iradiate cu probele vitroceramice pentru monitorizarea fluenței neutronilor. Discurile Al și Fe au fost activate prin reacțiile nucleare $^{56}Fe(n,p)^{56}Mn$, $^{27}Al(n,p)^{27}Mg$ și $^{27}Al(n,\alpha)^{24}Na$. Datele reacțiilor nucleare și incertitudinile acestora au fost preluate din tabelul WWW Table of Radioactive Isotopes evaluat de Chu și colab. (1999) [40]. După iradiere, activitățile gama ale discurilor au fost măsurate cu un detector HPGe calibrat. S-a determinat aria picului. Codul de evaluare a spectrului gama FGM (Székely, 1985) [41] a fost utilizat pentru a determina ariei picului în mod off-line. Au fost determinate astfel activitățile de saturație ale radioizotopilor ^{56}Mn , ^{27}Mg și ^{24}Na . Rezultatele obținute au fost utilizate pentru estimarea fluenței neutronilor livrați vitroceramicii.

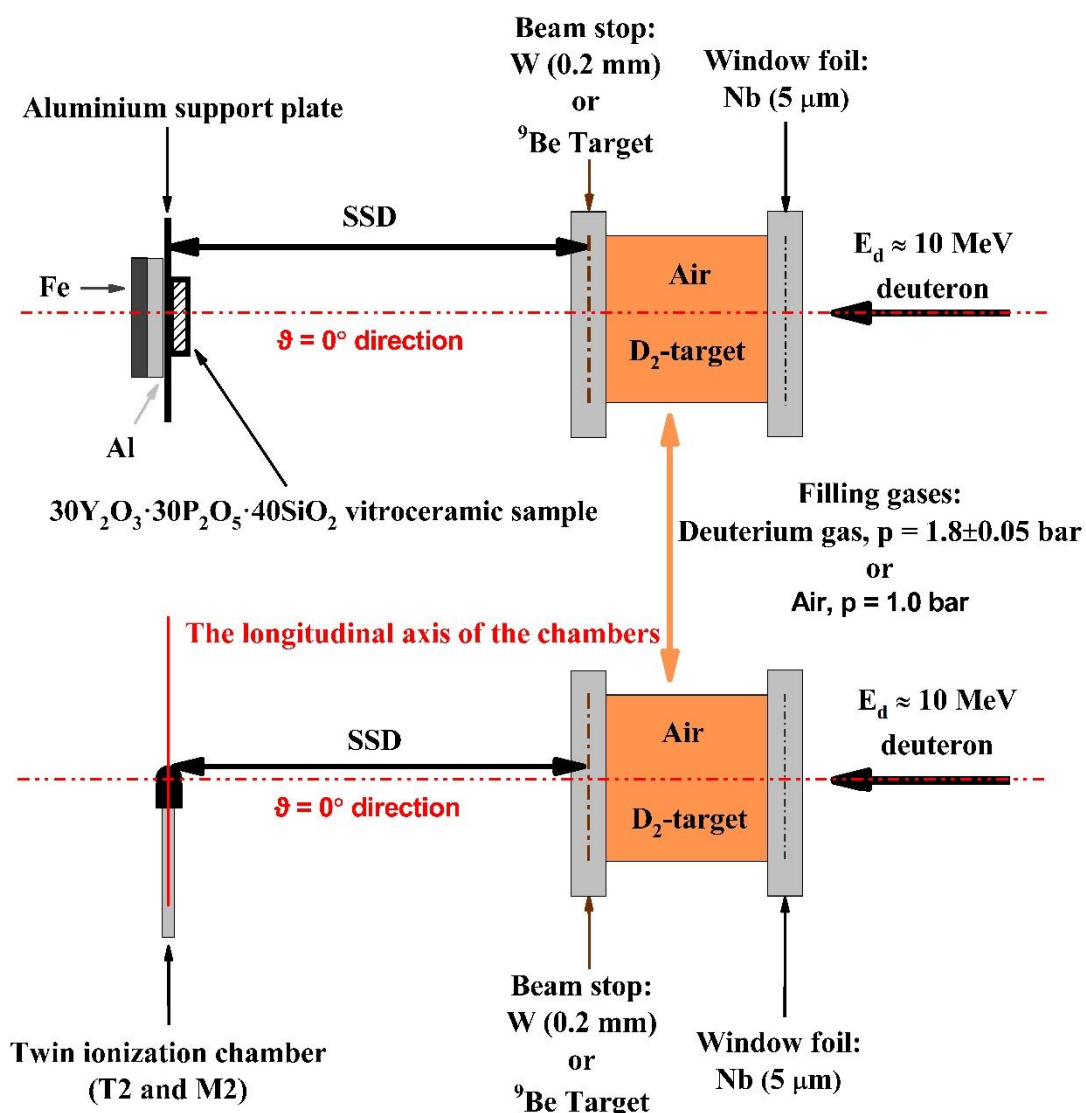


Figura 2-1. Schițele generale ale aranjamentelor iradierilor (sus) și măsurătorilor de dozimetrie (jos) efectuate pentru spectrul cvasi-monoenergetic cu sursa de neutroni d+D și pentru spectrul continuu cu sursa de neutroni d+Be.

De asemenea, activitatea de saturație a fost calculată utilizând spectrele de neutroni ale surselor de neutroni d+Be și d+D (a se vedea **Figura 2-2**) [35] și funcțiile de excitație ale reacțiilor nucleare ale monitorului. Activitatea de saturație măsurată a fost comparată cu activitatea de saturație calculată. De asemenea, această metodă a fost utilizată pentru validarea spectrelor de neutroni estimate.

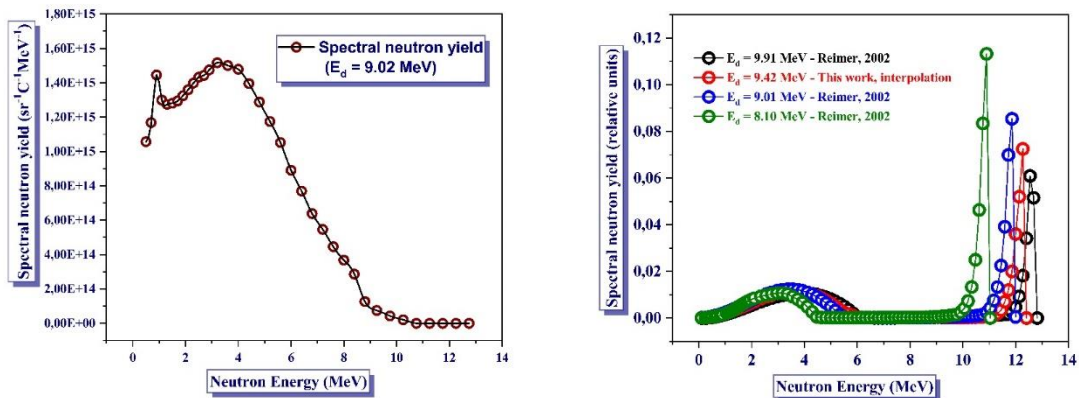


Figura 2-2. Spectrele de neutroni relevante ale surselor de neutroni d+Be și d+D în direcția $\vartheta = 0^\circ$.

Spectrul extrapolat al neutronilor de la sursa d+Be și spectrul interpolat al neutronilor de la sursa d+D au fost utilizate pentru calcularea debitului fluenței neutronilor, a activității de saturație și a debitului de neutroni KERMA. Datele referitoare la funcțiile de excitație ale reacțiilor nucleare ale monitorului au fost preluate din ENDF / B-VII.1 library [42].

Tabel 2-1 prezintă activitatea de saturație calculată (C), activitatea medie de saturație experimentală (E), raportul lor (C/E) și incertitudinile estimate, obținute din măsurătorile de activitate, precum și rezultate debitului calculat pentru fluența neutronilor.

Tabel 2-1. Activitatea de saturație calculată (C), activitatea medie de saturație experimentală (E) și raportul (C/E). E_d este energia deuterionului.

Neutron source	Number of irradiation	E_d (MeV)	Target	Nuclear reaction	Saturation activity (Bq)			Neutron fluence rate ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)
					Calculated	Experiment	C/E	
d+Be	1	9.02	Be d = 3 mm	$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	3.55E+03	3.49E+03 ± 8%	1.02	1.2E+07 ± 8%
				$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	8.45E+02	8.70E+02 ± 6%	0.97	
				$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	8.74E+02	8.49E+02 ± 8%	1.03	
	3	8.64		$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	Not calc.	1.84E+04 ± 4%	N/A	Not calculated [†]
				$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	Not calc.	5.34E+03 ± 8%	N/A	
				$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	Not calc.	1.11E+04 ± 4%	N/A	
	5	9.04		$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	3.70E+04	3.54E+04 ± 2%	1.04	1.2E+08 ± 10%
				$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	8.80E+03	9.91E+03 ± 2%	0.89	
				$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	9.10E+03	9.67E+03 ± 4%	0.94	
d+D	2	9.42	D ₂ -gas p = 1.8 ± 0.05 bar	$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	1.03E+04	1.04E+04 ± 7%	0.99	4.2E+06 ± 10%
				$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	1.28E+04	1.22E+04 ± 10%	1.05	
				$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	7.74E+03	8.10E+03 ± 6%	0.96	
	4	9.35		$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	4.59E+03	5.48E+03 ± 5%	0.84	4.3E+06 ± 10%
				$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	2.82E+03	3.11E+03 ± 3%	0.91	
	6	9.37		$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	7.72E+03	6.96E+03 ± 6%	1.10	6.7E+06 ± 10%
$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$			4.74E+03	4.23E+03 ± 4%	1.12			

[†]Nu a fost disponibil spectru extrapolat.

Rezultatele măsurărilor dozimetrice în câmpuri mixte n- γ

Pentru estimarea sensibilității relative a vitroceramicii la neutroni în cazul iradierii în câmpuri mixte de radiații gama și neutroni (n- γ) cu surse de neutroni d+Be și d+D este nevoie de determinarea separată a dozei absorbite de neutroni și radiație gama. Doza de neutroni absorbită poate fi calculată din spectrul neutronilor și prin măsurători dozimetrice.

Tehnica camerei de ionizare descrisă de Broerse și colab. (1981) [43] și Wootton și colab. (1980) [44] a fost utilizată pentru determinarea separată a dozei absorbite de la neutroni și de la radiația gama pentru pozițiile în care a fost iradiată vitroceramica. Au fost utilizate camere de ionizare EXRADIN T2 și M2. Camera T2 (TE-TE) a fost confecționată din material plastic Shonka A-150 bun conducător de electricitate (Shonka și colab., 1958) [45], care este aproximativ un material echivalent cu țesutul muscular striat uman [43]. Gazul de umplere a fost un amestec de gaze echivalent țesutului [43]. Materialul din care s-a realizat camera M2 (Mg-Ar) a fost pe bază de magneziu, iar ca gaz de umplere s-a folosit argonul.

KERMA pentru neutroni s-a estimat folosind distribuțiile de energie ale debitului fluenței neutronilor proveniți de la sursele d+D și d+Be și factorii de conversie a fluenței KERMA. Factorii de fluență elementală au fost luați din lucrarea lui Chadwick și colab. [46]). Valorile obținute se referă la poziția în care a fost iradiată proba vitroceramică.

Doza absorbită de neutroni măsurată a fost comparată cu valorile KERMA pentru neutroni. Doza absorbită de neutroni și valorile KERMA pentru neutroni se referă la plasticul Shonka A-150. În **Tabelul 2-1** sunt prezentate doza absorbită măsurată pentru neutroni și radiația gama și valorile KERMA estimate pentru fiecare iradiere a vitroceramicii $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$.

Tabelul 2-1. Rezultatele măsurărilor dozimetrice și calculelor dozimetrice.

n- γ fields	Number of irradiation	SSD (mm)	Twin ionization chambers (EXRADIN T2 and M2)			From evaluated data
			Measured absorbed doses			Calculated
			D_N (Gy)	D_G (Gy)	D_{N+G} (Gy)	K (Gy)
d+Be	1	259	$2.51 \pm 8\%$	$0.24 \pm 14\%$	$2.75 \pm 16\%$	2.81
	3	259	$8.12 \pm 8\%$	$1.34 \pm 14\%$	$9.46 \pm 16\%$	Not calc. [†]
	5	259	$84.19 \pm 8\%$	$13.91 \pm 14\%$	$98.10 \pm 16\%$	108.6
d+D	2	93.3	$1.49 \pm 8\%$	$0.18 \pm 14\%$	$1.67 \pm 16\%$	1.43
	4	88.3	$4.50 \pm 8\%$	$0.63 \pm 14\%$	$5.13 \pm 16\%$	4.99
	6	91.3	$25.55 \pm 8\%$	$5.27 \pm 14\%$	$30.82 \pm 16\%$	23.17

[†]Nu a fost disponibil spectrul extrapolat.

3. Termoluminescența materialului vitroc ceramic $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ iradiat cu neutroni cu spectru energetic continuu proveniți de la d+Be și cu spectru cvasi-monoenergetic proveniți de la sursa d+D

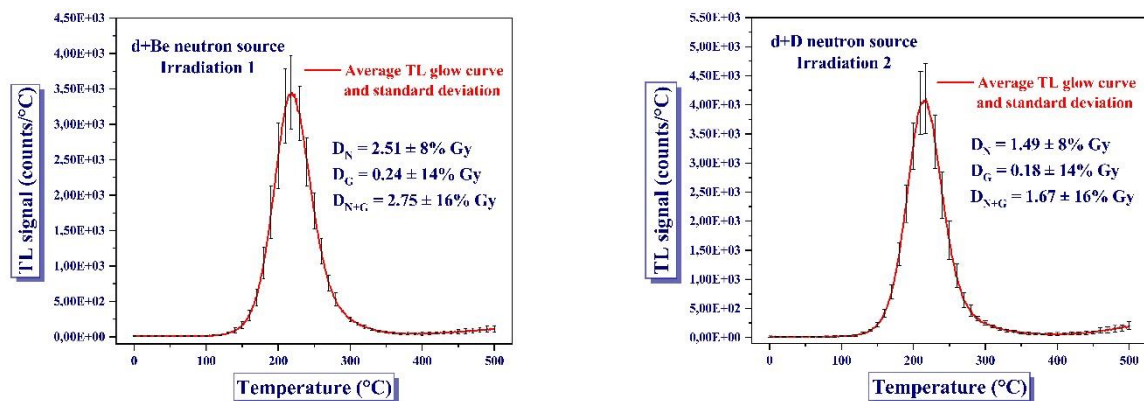
După fiecare iradiere, au fost preparate mai multe alicoturi pentru măsurarea semnalelor TL. Înainte de citirea probelor iradiate a fost aplicat un tratament termic, care a fost o preîncălzire la 175°C timp de 10 secunde. Apoi, proba a fost încălzită până la 500°C la 5°C/s (o viteză de încălzire controlată). Semnalele TL au fost integrate în intervalul de temperatură între 150°C și 300°C . Curbele de strălucire TL și semnalele TL integrate au fost normalizate la 10 mg.

Curbele de strălucire TL obținute după iradierea în câmpuri mixte n- γ

Formele curbelor de strălucire TL au fost comparate cu curbele de strălucire TL obținute din experimentele efectuate cu electroni / radiație beta. Se poate concluziona că în regiunea de temperatură de la 150°C până la 300°C :

- forma curbelor de strălucire TL normalizate este practic independentă de
 - spectrul de neutroni,
 - doza de neutroni absorbită;
- forma curbelor de strălucire TL normalizate este foarte asemănătoare cu curbele de strălucire TL normalizate obținute din măsurătorile efectuate cu electroni beta.

Figura 3-1 prezintă la curbele de strălucire TL mediate și normalizate și deviațiile standard.



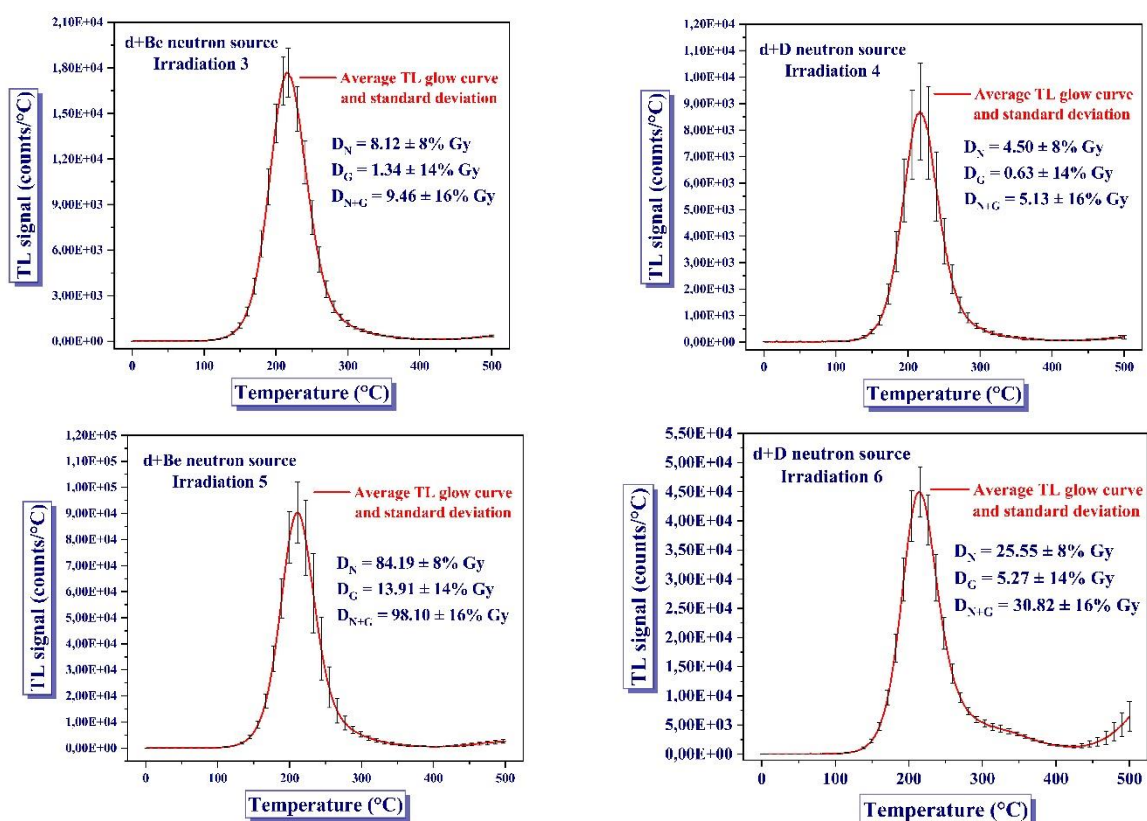


Figura 3-1. Curbele de strălucire TL mediate și normalizate, cu deviațiile standard. Deviațiile standard au fost reprezentate în intervale de 10°C.

Determinarea semnalelor TL produse de neutronii rapizi și estimarea sensibilității relative a vitroceramicii la neutroni

În cazul câmpurilor mixte n-γ, atât fotonii gama cât și neutronii ar putea contribui la semnalul TL obținut. Semnalul masic net normalizat \overline{TL}_{N+G} indus de iradierea probelor în câmpuri mixte γ-n a fost calculat ca diferența dintre semnalul normalizat $\overline{TL}_{N+G;norm}^{proba}$ obținut pentru proba iradiată și semnalul normalizat $\overline{TL}_{norm}^{referință}$ obținut pentru proba de referință neiradiată:

$$\overline{TL}_{N+G} = \overline{TL}_{N+G;norm}^{proba} - \overline{TL}_{norm}^{referință} \quad \text{Eq. 3-1}$$

Componenta semnalului TL atribuită dozei gama absorbite a fost calculată pe baza măsurătorilor de doză gama absorbită efectuate cu camerele de ionizare și sensibilitatea TL beta/gama a materialului (adică $S = 760478$ cts/Gy pentru 10 mg) s-a calculat din relația

$$TL_G = S * D_G \quad \text{Eq. 3-2}$$

Contribuția TL_N a componentei de neutroni a câmpului mixt n- γ a fost estimată folosind valoarea calculată TL_G și măsurată \overline{TL}_{N+G} . Apoi, valoarea TL_N a fost calculată ca

$$TL_N = \overline{TL}_{N+G} - TL_G \quad \text{Eq. 3-3}$$

Sensibilitatea relativă a vitroceramicii cu 30 % mol Y_2O_3 la neutroni (k_V) a fost estimată ca

$$k_V = \frac{R_{N/G}}{R_D} = \frac{(TL_N/TL_G)}{(D_N/D_G)} \quad \text{Eq. 3-4}$$

Datele sugerează că nu numai fotonii gama, dar și neutronii rapizi induc răspunsul termoluminescent a vitroceramicii cu 30 % mol Y_2O_3 . Mai mult, sensibilitățile relative ale vitroceramicii la neutroni sugerează un răspuns TL în funcție de energia de neutroni în cazul regiunii de doză absorbită $D_n = 1.5 - 85$. **Tabel 3-1** rezumă rezultatele măsurătorilor dozimetrice și măsurătorilor TL pentru vitroceramica cu 30 % mol Y_2O_3 iradiată în câmpuri mixte n- γ .

Tabel 3-1. Rezultatele experimentelor de iradiere efectuate în câmpuri mixte n- γ cu vitroceramica 30Y₂O₃·30P₂O₅·40SiO₂. ID este numărul iradierii. \bar{k}_V este sensibilitatea medie relativă a materialului vitroceramic la neutroni.

n- γ field	Irr. ID	Sample ID	Twin ionization chambers (EXRADIN T2 and M2)		Thermoluminescent vitroceramics (30Y ₂ O ₃ ·30P ₂ O ₅ ·40SiO ₂)				
			Absorbed dose		Relative neutron sensitivity				
			Measured		Calculated				
			D _N (Gy)	D _G (Gy)	net \overline{TL}_{N+G} (counts/10 mg)	TL _G (counts/10 mg)	TL _N (counts/10 mg)	k _V	\bar{k}_V
d+Be	1	1	2.51 ± 8%	0.24 ± 14%	227892 ± 15%	171378 ± 14%	56514 ± 21%	0.032 ± 30%	0.032 ± 7%
	3	1	8.12 ± 8%	1.34 ± 14%	1194725 ± 10%	1008556 ± 14%	186168 ± 17%	0.030 ± 27%	
		3 [†]			1348295 ± 7%		339739 ± 16%	0.056 [†] ± 26%	
	5	1	84.19 ± 8%	13.91 ± 14%	5573635 ± 16%	4600930 ± 14%	972705 ± 21%	0.035 ± 30%	
		3			5426488 ± 8.5%		825558 ± 16%	0.030 ± 27%	
	d+D	2	1	1.49 ± 8%	0.18 ± 14%	262458 ± 14%	125750 ± 14%	136708 ± 20%	
4		1 [†]	4.50 ± 8%	0.63 ± 14%	535761 ± 14%	467965 ± 14%	67796 ± 20%	0.020 [†] ± 29%	
		3			891422 ± 12%		423457 ± 18%	0.127 ± 28%	
6		1	25.55 ± 8%	5.27 ± 14%	2772283 ± 16%	1702163 ± 14%	1070121 ± 21%	0.130 ± 30%	
		3			2990635 ± 10%		1288473 ± 17%	0.156 ± 27%	

[†] Date aberante care nu au fost înțelese. Datele nu au fost utilizate pentru calcularea sensibilității relative medii a vitroceramicii la neutroni.

Estimarea răspunsului TL la doză pentru vitroceramica $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ iradiată în câmpuri mixte n- γ

Vitroceramica au fost iradiată în câmpuri mixte n- γ atât cu neutroni de spectru energetic continuu (sursa d+Be) cât și cu spectru cvasi-monoenergetic (sursa d+D). Dozele absorbite separat de la neutroni și de la radiația gamma au fost măsurate prin tehnica camerei de ionizare.

Scopul a fost estimarea semnalelor TL_G și TL_N din semnalul măsurat \overline{TL}_{N+G} , din dozele absorbite separată D_N și D_G și din sensibilitatea beta/gama TL ale vitroceramicii.

Estimarea răspunsului TL la doză a vitroceramicii iradiate în câmp mixte n- γ cu sursa de neutroni d+Be

Dozele totale absorbite au fost 1.67, 5.13 și 30.82 Gy. Dozele absorbite de la radiația gama au fost 0.24, 1.34 și 13.91 Gy. Dozele absorbite de la neutroni au fost 2.51, 8.12 și 84.19 Gy. Rezultatul sugerează că răspunsurile vitroceramicii $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ la doză au fost liniare în limitele erorilor măsurătorilor de dozimetrie. **Figura 3-2** prezintă răspunsul estimat la doză al vitroceramicii în funcție de dozele absorbite. Erorile indicate au fost obținute din măsurătorile de dozimetrie și măsurătorile semnalelor TL.

Estimarea răspunsului TL la doză a vitroceramicii iradiate în câmp mixte n- γ cu sursa de neutroni d+D

Dozele totale absorbite au fost 2.75, 9.46 și 98.10 Gy. Dozele absorbite de la radiația gama au fost 0.18, 0.63 și 5.27 Gy Gy. Dozele absorbite de la neutroni au fost 1.49, 4.50 și 25.55 Gy. Rezultatul sugerează că răspunsurile vitroceramicii $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ la doză au fost liniare în limitele erorilor măsurătorilor de dozimetrie. **Figura 3-2** prezintă răspunsul estimat la doză al vitroceramicii în funcție de dozele absorbite. Erorile indicate au fost obținute din măsurătorile de dozimetrie și măsurătorile semnalelor TL.

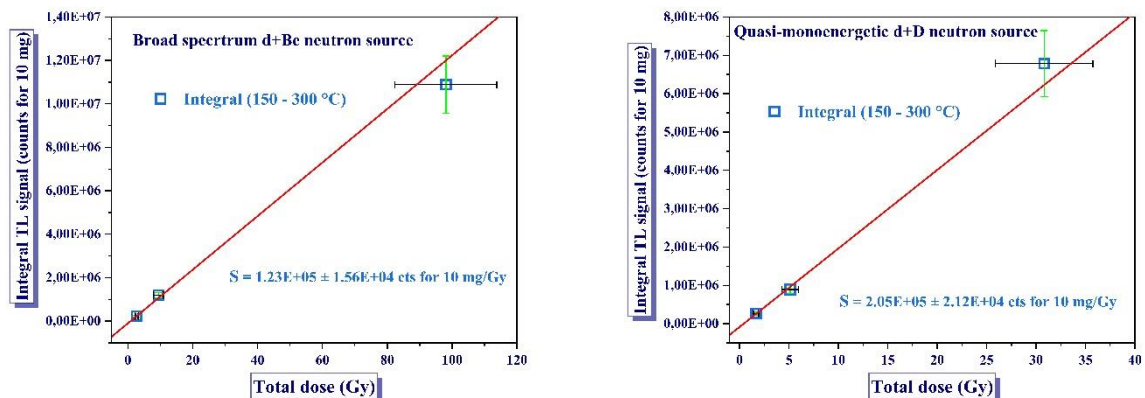


Figura 3-2. Răspunsul TL la doză pentru vitrocera mica $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ în funcție de doza totală absorbită (D_{N+G}).

4. Investigarea TL cu β^- particule a vitrocera micii $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ după iradierile cu neutroni

Scopurile investigațiilor au fost

- dacă doza de neutroni absorbită de 80-110 Gy a dus la modificarea permanentă observabilă a curbelor de strălucire TL ale material sau nu,
- dacă doza de neutroni absorbită de 80-110 Gy a dus la modificarea permanentă observabilă a răspunsului la doză al material sau nu,
- măsurarea răspunsului TL în funcție de doza β^- absorbită, în intervalul de doză absorbită $D_\beta = 0.75 - 1000$ Gy.

Pentru studii au fost utilizate probele 2&4 și proba 3. Probele 2&4 nu au mai fost iradiate înainte. Proba 3 a fost iradiată cu neutroni rapizi ($D_N \approx 100$ Gy) în experimentele anterioare.

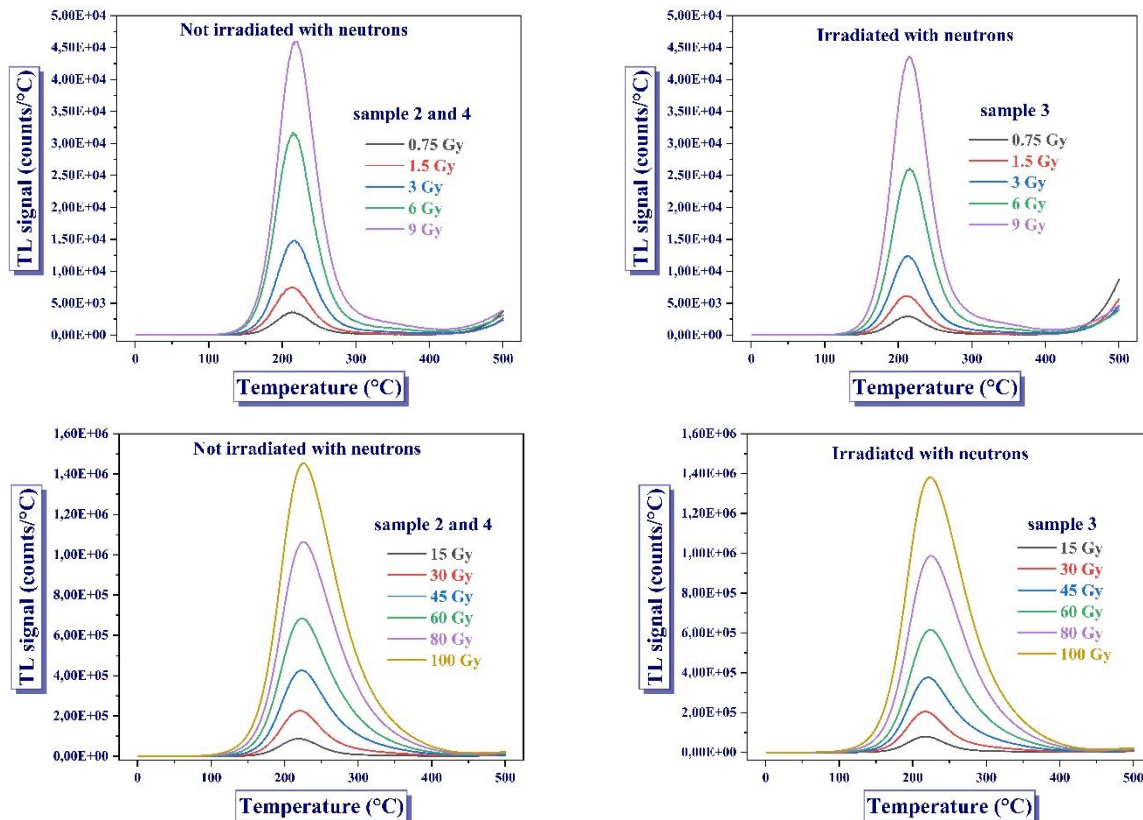
Probele 2&4 și proba 3 au fost expuse la doze absorbite β^- scăzute (0.75, 1.5, 3, 6, 9 și 15 Gy) și ridicate (30, 45, 60, 80, 100, 200, 400, 500 și 1000 Gy) la sursa beta ^{90}Sr - ^{90}Y (Risø TL/OSL Model TL/OSL-DA-20). Au fost efectuate trei experimente. Trebuie subliniat faptul că proba 3 nu a fost iradiată cu 1000 Gy.

Curbele de strălucire TL ale materialului vitroceramic și răspunsul TL în funcție de dozele absorbite β^-

Tratamentul termic a constat dintr-o preîncălzire cu o durată de 10 s la 175 °C. Semnalele TL integrate și curbele de strălucire TL au fost normalizate la o masă de 10 mg pentru fiecare alicotă.

Curbele de strălucire

Curba de strălucire TL a materialului vitroceramic $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ a avut un picul cu maximul la aproximativ 220 °C. Cu creșterea dozei absorbite, regiunea de interes (ROI) a curbei de strălucire TL a trebuit lărgită. În cazurile dozele absorbite de 0.75, 1.5, 3, 6, 9 și 15 Gy, ROI-ul ales pentru integrarea semnalelor TL a fost în intervalul de temperatură 150 °C - 300 °C. În cazul dozei absorbite de 30 Gy, ROI-ul selectat a fost de la 150 °C până la 350 °C. În cazurile dozelor absorbite de 45, 60, 80 și 100 Gy, ROI-ul selectat a fost de 100 °C - 400 °C. În cazul dozei absorbite de 200 Gy, ROI-ul ales pentru integrarea semnalelor TL a fost în intervalul de temperatură 100 °C - 450 °C. În cazurile dozelor absorbite de 400, 500 și 1000 Gy, ROI-ul selectat a fost de 50 °C - 500 °C. Fiecare alicotă de vitroceramică a arătat rezultate similare în funcție de doza absorbită. În **Figura 4-1** sunt prezentate curbele de strălucire TL ale alicotelor.



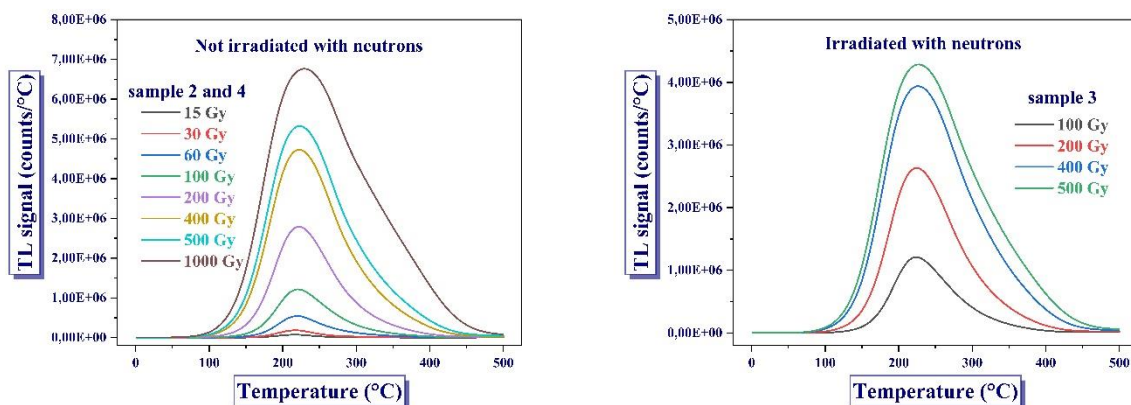


Figura 4-1. Curbele mediate de strălucire TL în funcție de doză absorbită.

Răspuns la doză

Pentru obținerea răspunsului la doză a semnalului TL, care depinde de intervalul de doză absorbită, pe baza rezultatelor anterioare au fost utilizate intervalele de temperatură 150 °C - 300 °C, 100 °C - 400 °C și 50 °C - 500 °C.

Răspunsurile la doză ale probelor (proba 2&4 și proba 3) au fost liniare în intervalul de doză absorbită între 0.75 Gy și 9 Gy. Sensibilitatea probelor 2&4 a fost $3.38 \text{ E}+05 \pm 6.77\text{E}+03$ cts pentru 10 mg/Gy. Sensibilitatea probei 3 a fost $2.84 \text{ E}+05 \pm 8.60\text{E}+03$ cts pentru 10 mg/Gy. În intervalul 9 Gy - 45 Gy răspunsurile la doză ale probelor (proba 2&4 și proba 3) nu au fost liniare, datele putând fi fitate cu o funcție polinomială de gradul al doilea. Răspunsurile la doză ale probelor (proba 2&4 și proba 3) au fost liniare în intervalul 45 Gy - 100 Gy. Sensibilitatea probei 2&4 a fost de $1.92 \text{ E}+06 \pm 7.28\text{E}+04$ cts pentru 10 mg/Gy. Sensibilitatea probei 3 a fost $2.04 \text{ E}+06 \pm 1.17\text{E}+05$ cts pentru 10 mg/Gy. În intervalul 15 Gy - 100 Gy, răspunsurile la doză ale probelor (proba 2&4 și proba 3) nu au fost liniare și un polinom de gradul al patrulea s-a potrivit fitării datelor. Răspunsurile la doză ale probelor (proba 2&4 și proba 3) nu au fost liniare în intervalul 0.75 Gy - 100 Gy. Nu s-a găsit nicio potrivire pentru întregul interval de doză absorbită. În intervalul 100 Gy - 1000 Gy, răspunsul la doză al probei 2&4 nu a fost liniar și un polinom de gradul al doilea s-a potrivit fitării datelor. În intervalul 100 Gy - 500 Gy, răspunsul la doză al probei 3 nu a fost liniar și un polinom de gradul al doilea s-a potrivit fitării datelor. **Figura 4-2** prezintă răspunsul la doză al probelor (proba 2&4 și proba 3) în funcție de doză β^- absorbită.

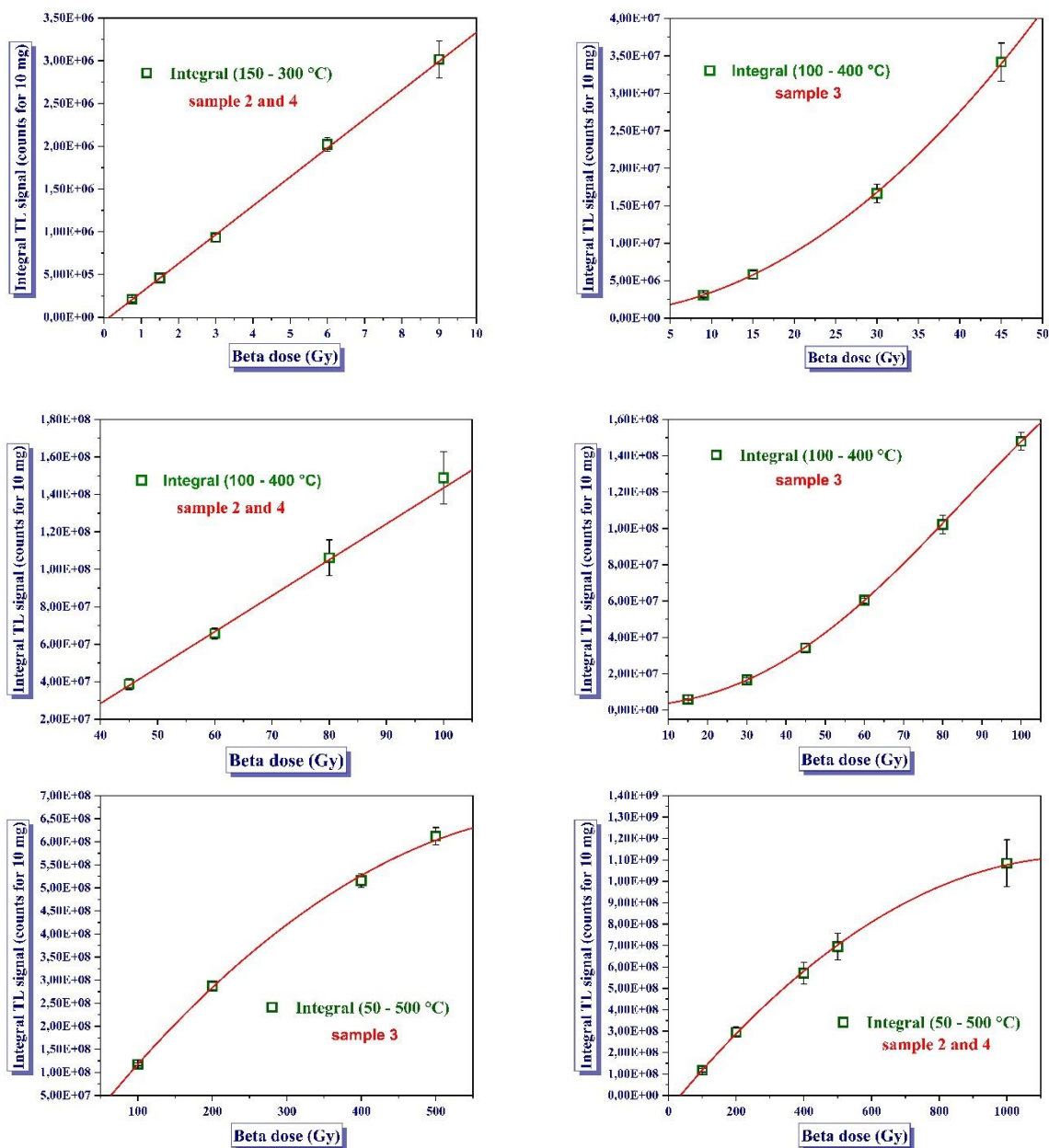


Figura 4-2. Răspunsul reprezentativ la doză al probelor (proba 2&4 și proba 3).

Compararea răspunsurilor TL ale probei iradiate și probei neiradiate cu neutroni rapizi

În cazul iradierilor, s-au utilizat proba 2&4 și proba 3, iar răspunsurile probelor la doză au fost similare în intervalul 0.75 - 1000 Gy. **Figura 4-3** prezintă compararea răspunsului probelor la doză. Semnalele TL medii sunt prezentate pentru intervalul 0.75 Gy - 9 Gy (a), pentru intervalul 45 Gy - 100 Gy (b), pentru intervalul 15 Gy - 100 Gy (c) și pentru intervalul 100 Gy - 1000 Gy (d).

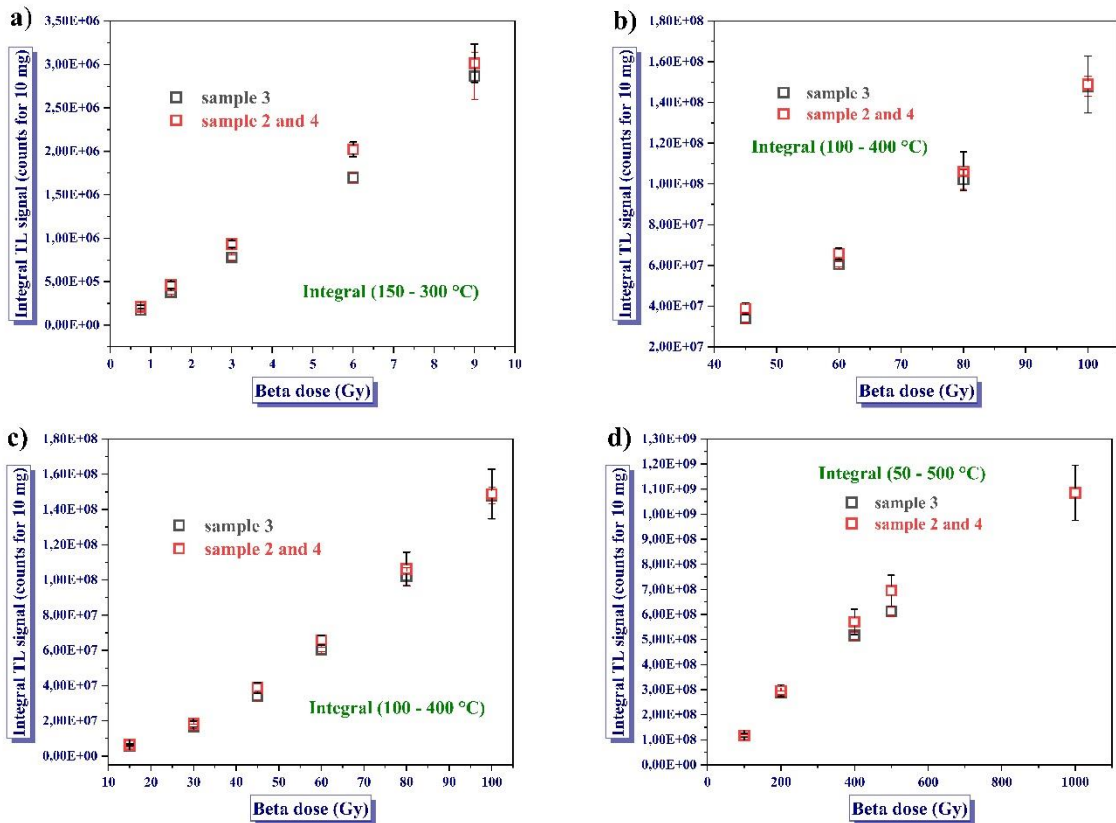


Figura 4-3. Compararea răspunsului mediu la doză pentru proba 2&4 și proba 3.

În intervalul 0.75 - 1000 Gy funcțiile de răspuns la doză ale probei 3 și probei 2&4 sunt similare. Răspunsul la doză a probei 2&4 este neliniar în intervalul 0.75 Gy - 1000 Gy. Răspunsul la doză al probei 3 este neliniar în intervalul 0.75 Gy - 500 Gy și este similar cu răspunsul la doză al probă 2&4 în acest interval de doză absorbită. **Figura 4-4** prezintă compararea răspunsului mediu la doză al probelor. Semnalele medie TL sunt prezentate în intervalul 0.75 Gy - 1000 Gy (a) și în intervalul 0.75 Gy - 1000 Gy (b).

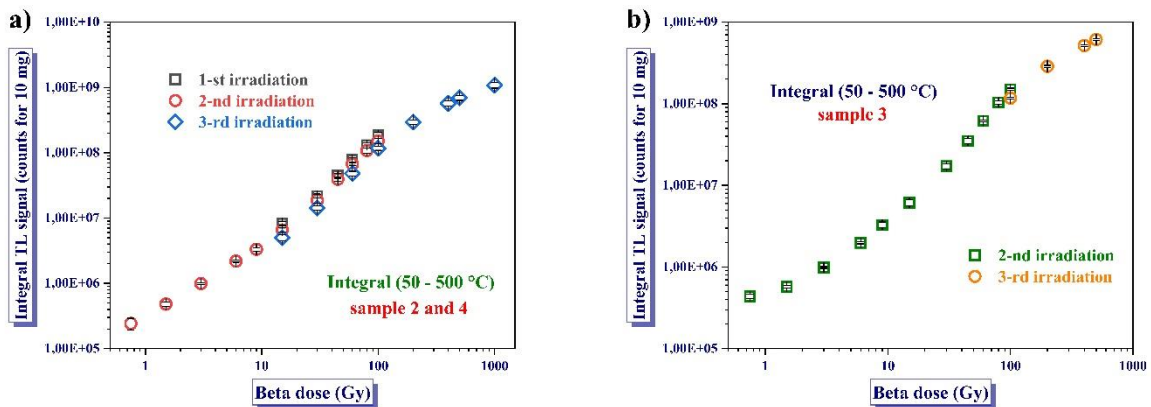


Figura 4-4. Curba de răspuns la doză ale Proba 2&4 și Proba 3.

După citirea alicotelor, fiecare dintre ele au fost iradiate din nou individual cu aceeași doză absorbită aleasă arbitrar din setul de valori ale dozei utilizate în timpul experimentului. Apoi au fost măsurate semnalele TL ale alicote. În cazul fiecărei alicote, semnalele TL obținute de la studiul răspunsului la doză au fost comparate cu semnalele TL obținute de la „repetare” (TL din studiu/TL din repetare). Astfel, a fost calculat raportul semnalelor TL medii ale alicotele. Rezultatele obținute prin „procedura de repetare” sunt prezentate în **Figura 4-5**. Raportul semnalelor TL ale fiecărei alicote sugerează o fluctuație statistică și nu o tendință anume.

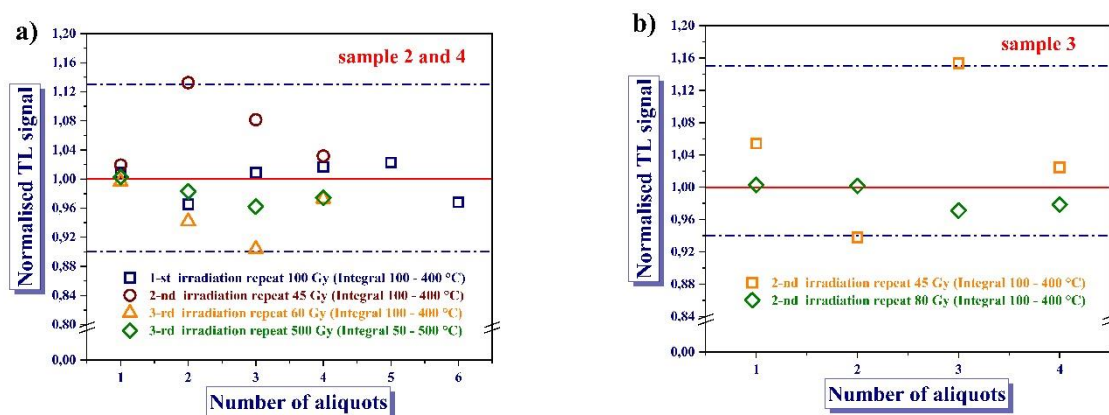


Figura 4-5. Rezultatele obținute prin „procedura de repetare”.

Am dorit să obținem informații despre efectul posibil al deteriorării deplasării induse de neutronii rapizi asupra răspunsului TL cu radiații β^- în cazul vitroceramicii cu 30 % mol Y_2O_3 . Semnalele TL obținute din studiului răspunsului la doză al probelor 2 și 4 (neiradiate cu neutroni) și al probei 3 (iradiate cu neutroni rapizi) au fost comparate calculând proporțiile $\xi = TL_{Probele\ 2\ \&\ 4} / TL_{Probele\ 3}$. Semnalele TL au fost mediate și normalizate la masa de 10 mg. Dozele β^- absorbite au fost $D = 0.75, 1.5, 3, 6, 9, 15, 30, 45, 60, 80, 100, 200, 400$ și 500 Gy. Pe baza rezultatelor obținute se poate concluziona că iradierea anterioară cu neutroni rapizi nu a avut un efect semnificativ statistic asupra răspunsului TL al vitroceramicii. Rapoartele semnalelor TL din cele trei iradieri sunt prezentate în **Tabelul 4-1**.

Tabelul 4-1. Rapoartele $\xi = TL_{Probele\ 2\&4}/TL_{Probele\ 3}$ semnalelor TL medii în funcție de doza de radiație β^- absorbită.

Irradiation 1 at the ^{90}Sr - ^{90}Y source								
Dose (Gy)	60	100	100	Integration region				
ξ	0.914	0.909	0.911	100-400 °C				
Irradiation 2 at the ^{90}Sr - ^{90}Y source								
Dose (Gy)	0.75	1.5	3	6	9	15	Integration region	
ξ	1.213	1.180	1.179	1.184	1.047	1.093	150-300 °C	
Dose (Gy)	30	45	60	80	100	Integration region		
ξ	1.098	1.132	1.087	1.039	1.005	100-400 °C		
Irradiation 3 at the ^{90}Sr - ^{90}Y source								
Dose (Gy)	60*	60*	100*	200	400	500	500	Integration region
ξ	0.906	0.949	0.997	1.027	1.105	1.135	1.157	50-500 °C

*Semnalele TL au fost integrate între 100 și 400 °C.

5. Prezentarea generală a dozelor absorbite de vitroceramica cu 30 % mol Y_2O_3

Tabel 5-1 rezumă dozele absorbite de radiație β^- de către probe (1, 2, 3 și 4) de la sursa beta ^{90}Sr - ^{90}Y .

Tabel 5-2 rezumă dozele de neutroni și radiație gama absorbite de probe (1, 2, 3 și 4) folosind sursele de neutroni d+Be și d+D.

Tabel 5-1. Dozele de radiație beta absorbite de probel.

Radiation type	Number of irradiation	Sample 1	Sample 2	Sample 3	Sample 4
		Dose (Gy)	Dose (Gy)	Dose (Gy)	Dose (Gy)
β^- particles of ^{90}Sr - ^{90}Y	1	100	430	60	430
	2	40	395	475	410
	3	0	2865	1260	2865
Total β^- absorbed dose		140	3690	1795	3705

Tabel 5-2. Dozele de neutroni și radiație gama absorbite de probe în cazurile surselor de neutroni d + Be și d + D.

Radiation type	Number of irradiation	Sample 1		Sample 2		Sample 3		Sample 4	
		Dose (Gy)		Dose (Gy)		Dose (Gy)		Dose (Gy)	
		n	γ	n	γ	n	γ	n	γ
Mixed n- γ field of d+Be	1	2.51	0.24	0	0	2.51	0.24	0	0
	3	8.12	1.34	0	0	8.12	1.34	0	0
	5	84.19	13.91	0	0	84.19	13.91	0	0
Total n-γ absorbed dose		94.82	15.49	0	0	94.82	15.49	0	0
Mixed n- γ field of d+D	2	1.49	0.18	0	0	1.49	0.18	0	0
	4	4.50	0.63	0	0	4.50	0.63	0	0
	6	25.55	5.27	0	0	25.55	5.27	0	0
Total n-γ absorbed dose		31.54	6.08	0	0	31.54	6.08	0	0

II. CONCLUZII

Au fost efectuate investigații comparative detaliate referitoare la proprietățile de termoluminescență indusă de radiațiile nucleare în tipuri noi de compuși vitroceramici $xY_2O_3 \cdot (60-x)P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ cu diferite concentrații de Y_2O_3 la ($x = 0, 5, 10, 15, 20, 30$ % mol). Materialul vitroceramic $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ furnizează cel mai mare răspuns termoluminescent pe unitate de doză absorbită de particule β^- și se pot trage următoarele concluzii principale:

- vitroceramica are o structură a curbei de strălucire mai puțin complicată;
- picul dominant la temperatură ridicată prezintă semnalele cele mai strălucitoare și cel mai bun grad de liniaritate (de la 0.75 Gy până la 9 Gy);
- materialul are omogenitate acceptabilă, stabilitatea semnalului în timp este foarte bună, repetabilitate bună și doza minimă detectabilă este de 4 mGy;
- acest material este un candidat adecvat în scopuri de dozimetrie.

Din studiul proprietăților de termoluminescență a vitroceramicilor $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ în câmpurile mixte γ -n, se pot trage următoarele concluzii principale:

- neutronii rapizi au contribuit la răspunsul termoluminescenței vitroceramicii cu 30 % mol Y_2O_3 ;
- rezultatele obținute sugerează că sensibilitatea relativă a vitroceramicii la neutroni depinde de energia neutronilor în regiunea de doză absorbită de $D_n = 1.5 - 85$;
- în cazul neutronilor de la sursa d+Be ($E_n = 0 - 14.5$ MeV; $\bar{E}_n = 3.5$ MeV), valoarea medie ale sensibilității relative a vitroceramicii la neutroni a fost $(\bar{k}_V)_{d+Be} = 0.032 \pm 7\%$;
- în cazul neutronilor de la sursa d+D ($E_n = 12.4 \pm 0.22$ MeV), valoarea medie a sensibilității relative a vitroceramicii la neutroni a fost $(\bar{k}_V)_{d+D} = 0.136 \pm 10\%$;
- în cazurile surselor de neutroni d+Be și d+D, rezultatele obținute sugerează că răspunsurile TL estimate pentru vitroceramica cu 30 % mol Y_2O_3 depind liniar de dozele absorbite de neutroni, radiație gama și radiație totală, și se încadrează în limitele de eroare a măsurătorilor dozimetrice;

Am studiat efectul posibil de deteriorare a deplasării induse de neutronii rapizi asupra răspunsului TL la radiații β^- , al vitroceramicii cu 30 % mol Y_2O_3 , și se pot trage următoarele concluzii principale:

- curbele de strălucire și răspunsul la doză al vitroceramicii cu 30 % mol Y_2O_3 iradiate cu neutroni și neiradiate cu neutroni sunt în concordanță, în limita erorilor de măsură;
- pe de altă parte, raportul semnalului TL al vitroceramicii cu 30 % mol Y_2O_3 iradiate cu neutroni și neiradiate cu neutroni a fost fluctuat în jurul valorii 1;
- pe baza rezultatelor obținute, se poate concluziona că nu s-a observat niciun efect semnificativ statistic de deteriorare a deplasării induse de neutronii rapizi asupra proprietăților TL ale materialului.

Pe baza rezultatelor obținute, se poate concluziona că vitroceramica $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ este un bun candidat pentru scopuri de dozimetrie în câmpurile de radiații ale particulelor beta, fotonilor gama și în câmpurile mixte de radiații gama și neutroni. În plus, vitroceramica $30Y_2O_3 \cdot 30P_2O_5 \cdot 40SiO_2$ termoluminiscentă este o alegere bună pentru a monitoriza deteriorarea radiațiilor în dispozitivelor microelectronice (de ex., în MOSFET) și în sisteme cu fibră optică care conțin sticlele fosfosilicate.

References

- [1] Glenn F. Knoll: Radiation detection and measurement, third edition, John Wiley & Sons, New York, United States of America, 2000.
- [2] J. Izewska and G. Rajan: Radiation dosimeters, Chapter 3 in International Atomic Energy Agency (IAEA), Technical Editor: E. B. Podgorsak: Radiation Oncology Physics: A Handbook for Teachers and Students, Printed by the IAEA, Vienna, Austria, p. 84-88, 2005.
- [3] Frank Herbert Attix: Introduction to radiological physics and radiation dosimetry, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 1986.
- [4] V. Kortov: Materials for thermoluminescent dosimetry: current status and future trends, Radiation Measurements, 42, 576–581, 2007.
- [5] S.W.S. McKeever: Thermoluminescence of Solids, Cambridge University Press, Cambridge, 1985.
- [6] S.W.S. McKeever, M. Moscovitch and P.D. Townsend: Thermoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses, Nuclear Technology Publishing, Ashford 1995.
- [7] C. Furetta and P.-S. Weng: Operational Thermoluminescence Dosimetry, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore, 1998.
- [8] C. Furetta, M. Prokić, R. Salomon and G. Kitis: Dosimetric characteristics of tissue equivalent thermoluminescent solid TL detectors based on lithium borate, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 456, 411-417, 2001.
- [9] M. Prokić: Lithium Borate Solid TL Detectors, Radiation Measurements, 33, 393-396, 2001.
- [10] M. Santiago, C. Grasselli, E. Caselli, M. Lester, A. Lavat, and F. Spano: Thermoluminescence of SrB₄O₇: Dy, Physica Status Solidi, 185, 285-289, 2001.
- [11] G.V. Rao, P.Y. Reddy and N. Veeraiah: Thermoluminescence studies on Li₂O-CaF₂-B₂O₃ glasses doped with manganese ions, Materials Letter, 57, 403-408, 2002.

- [12] J. Li, J.Q. Hao, C.Y. Li, C.X. Zhang, Q. Tang, Y.L. Zhang, Q. Su and S.B. Wang: Thermally stimulated luminescence studies for dysprosium doped strontium tetraborate, *Radiation Measurements*, 39, 229-233, 2005.
- [13] S.S. Rojas, K. Yukimitu, A.S.S. de Camargo, L.A.O. Nunes and A.C. Hernandez: Undoped and calcium doped borate glass system for thermoluminescent dosimeter, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 352, 3608-3612, 2006.
- [14] S.Y. Marzouk, F.H. Elbatal, A.M. Salem and S.M. Abo-Naf: Absorption spectra of gamma-irradiation TM-doped cabal glasses, *Optical Materials*, 29, 1456-1466, 2007.
- [15] E.M. Yoshimura, C.N. Santos, A. Ibanez and A.C. Hernandez: Thermoluminescent and optical absorption properties of neodymium doped yttrium aluminoborate and yttrium calcium borate glasses, *Optical Materials*, 31, 795-799, 2009.
- [16] M.M. Elkholy: Thermoluminescence of B_2O_3 - Li_2O glass system doped with MgO , *Journal of Luminescence*, 130, 1880-1892, 2010.
- [17] E. Tekin, A. Ege, T. Karali, P.D. Townsend and M. Prokic: Thermoluminescence studies of thermally treated $CaB_4O_7:Dy$, *Radiation Measurements*, 45, 764-767, 2010.
- [18] Y.S.M. Alajerami, S. Hashim, S.K. Ghoshal, M.A. Saleh, T. Kadni, M.I. Saripan, K. Alzimami, Z. Ibrahim and D.A. Bradley: The effect of TiO_2 and MgO on the thermoluminescence properties of a lithium potassium borate glass system, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 74, 1816-1822, 2013.
- [19] H. Aboud, H. Wagiran, R. Hussin, H. Ali, Y. Alajerami and M.A. Saeed: Thermoluminescence properties of the Cu-doped lithium potassium borate glass, *Applied Radiation and Isotopes*, 90, 35-39, 2014.
- [20] M.M. Elkholy: Thermoluminescence for rare-earths doped tellurite glasses, *Materials Chemistry and Physics*, 77, 321-330, 2002.
- [21] J.S. Kim, A.K. Kwon, Y.H. Park, J.C. Choi, H.L. Park and G.C. Kim: Luminescent and thermal properties of full-color emitting $X_3MgSi_2O_8:Eu^{2+}, Mn^{2+}$ ($X=Ba, Sr, Ca$) phosphors for white LED, *Journal of Luminescence*, 122-123, 583-586, 2007.
- [22] M. Prokić and E.G. Yukihara: Dosimetric characteristics of high sensitive $Mg_2SiO_4:Tb$ solid TL detector, *Radiation Measurements*, 43, 463-466, 2008.
- [23] V. Pagonis, S. Mian, R. Mellinger and K. Chapman: Thermoluminescence kinetic study of binary lead-silicate glasses, *Journal of Luminescence*, 129, 570-577, 2009.

- [24] A. Timar-Gabor, C. Ivascu, S. Vasiliniuc, L. Daraban, I. Ardelean, C. Cosma and O. Cozar: Thermoluminescence and optically stimulated luminescence properties of the $0.5\text{P}_2\text{O}_5\text{-xBaO-(0.5-x)Li}_2\text{O}$ glass systems, *Applied Radiation and Isotopes*, 69, 780-784, 2011.
- [25] R.A. Barve, N. Suriyamurthy, B.S. Panigrahi and B. Venkatraman: Dosimetric investigations of Tb^{3+} -doped strontium silicate phosphor, *Radiation Protection Dosimetry*, doi: 10.1093/rpd/ncu226, 2014.
- [26] M.R. Chialanza, R. Keuchkerian, A. Cárdenas, A. Olivera, S. Vazquez, R. Faccio, J. Castiglioni, J.F. Schneider and L. Fornaro: Correlation between structure, crystallization and thermally stimulated luminescence response of some borate glass and glass-ceramics, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 427, 191–198, 2015.
- [27] J. Park and R.S. Lakes: *Biomaterials - An introduction*, Springer, New York, 3rd edition, ISBN: B00177XGHY, 2007.
- [28] J.B. Park: *Biomaterials Science and Engineering*, Plenum Press, New York, ISBN: 978-1-4612-9710-9, 1984.
- [29] Claudio Furetta: *Handbook of Thermoluminescence*, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore, 2003.
- [30] **B. Biró**, A. Pascu, A. Timar-Gabor and V. Simon: Thermoluminescence investigations on $x\text{Y}_2\text{O}_3\cdot(60-x)\text{P}_2\text{O}_5\cdot 40\text{SiO}_2$ vitroceramics, *Applied Radiation and Isotopes*, 98, 49-53, 2015.
- [31] Douglas D. DiJulio, Nataliia Cherkashyna, Julius Scherzinger, Anton Khaplanov, Dorothea Pfeiffer, Carsten P. Cooper-Jensen, Kevin G. Fissum, Kalliopi Kanaki, Oliver Kirstein, Georg Ehlers, Franz X. Gallmeier, Donald E. Hornbach, Erik B. Iverson, Robert J. Newby, Richard J. Hall-Wilton and Phillip M. Bentley: Characterization of the radiation background at the Spallation Neutron Source, VI European Conference on Neutron Scattering (ECNS2015), *Journal of Physics: Conference Series*, 746, 012033, 2016.
- [32] Homepage of International Fusion Materials Irradiation Facility (IFMIF). <http://www.ifmif.org/>

- [33] Yuefeng Qiu, Frederik Arbeiter, Ulrich Fischer and Florian Schwab: IFMIF-DONES HFTM neutronics modelling and nuclear response analyses, *Nuclear materials and Energy*, 15, 185-189, 2018.
- [34] International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) homepage, ITER Organization, 2018. <https://www.iter.org/proj/inafewlines>
- [35] **B. Biró**, A. Fenyvesi, A. Timar-Gabor and V. Simon: Thermoluminescence properties of $30\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot 30\text{P}_2\text{O}_5 \cdot 40\text{SiO}_2$ vitroceraamics in mixed neutron-gamma fields, *Applied Radiation and Isotopes*, 135, 224–231, 2018.
- [36] J.K. Christie, J. Malik and A. Tilocca: Bioactive glasses as potential radioisotope vectors for in situ cancer therapy: investigating the structural effects of yttrium, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 13, 17749–17755, 2011.
- [37] Y. Fu and J. K. Christie: Atomic structure and dissolution properties of yttrium containing phosphate glasses, *International Journal of Glass Science*, available online at DOI: 10.1111/ijag.12325, 2017.
- [38] H.J. Brede, G. Dietze, K. Kudo, U.J. Schrewe, F. Tancu and C. Wen: Neutron yields from thick be targets bombarded with deuterons or protons, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 274, 332-344, 1989
- [39] Peter Reimer: Fast neutron induced reactions leading to activation products: selected cases relevant to development of low activation materials, transmutation and hazard assessment of nuclear wastes, Doctoral degrees, The Faculty of Mathematics and Natural Sciences, The University of Cologne, Print shop of research center Jülich, 2002.
- [40] S.Y.F. Chu, L.P. Ekström and R.B. Firestone: The Lund/LBNL Nuclear Data Search, Version 2.0, 1999. (<http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>)
- [41] G. Székely: FGM - A flexible gamma-spectrum analysis program for a small computer, *Computer Physics Communications*, 34, 313-324, 1985.
- [42] M.B. Chadwick, M. Herman, P. Obložinský, M.E. Dunn, Y. Danon, A.C. Kahler, D.L. Smith, B. Pritychenko, G. Arbanas, R. Arcilla, R. Brewer, D.A. Brown, R. Capote, A.D. Carlson, Y.S. Cho, H. Derrien, K.Guber, G.M. Hale, S. Hoblit, S. Holloway, T.D. Johnson, T. Kawano, B.C. Kiedrowski, H. Kim, S. Kunieda, N.M. Larson, L. Leal, J.P. Lestone, R.C. Little, E.A. McCutchan, R.E. MacFarlane, M. MacInnes, C.M. Mattoon, R.D. McKnight, S.F. Mughabghab, G.P.A. Nobre, G. Palmiotti, A. Palumbo, M.T.

- Pigni, V.G. Pronyaev, R.O. Sayer, A.A. Sonzogni, N.C. Summers, P. Talou, I.J. Thompson, A. Trkov, R.L. Vogt, S.C. van der Marck, A. Wallner, M.C. White, D. Wiarda, and P.G. Young: ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data. Nuclear Data Sheets 112, 2887-3152, 2011. (<http://www.nndc.bnl.gov/sigma/index.jsp>)
- [43] J. J. Broerse, B. J. Mijnheer and J. R. Williams, European Clinical Neutron Dosimetry Group (ECNEU): European protocol for neutron dosimetry for external beam therapy, *British Journal of Radiology*, 54, 882-898, 1981.
- [44] P. Wootton, P. Almond, F.H. Attix, M. Awschalom, P. Bloch, J. Eenmaa, L. Goodman, R. Graves, J. Horton, F. Kuchnir, J. McDonald, V. Otte, P. Shapiro, J. Smathers, N. Suntharalingam and F. Waterman, Fast Neutron Beam Dosimetry Physics Radiation Therapy Committee: PROTOCOL FOR NEUTRON BEAM DOSIMETRY, AAPM REPORT No. 7, Task Group No. 18, American Association of Physicists in Medicine by the American Institute of Physics, New York, United States of America, 1-45, 1980.
- [45] R. F. Shonka, J. E. Rose, and G. Failla: "Conducting plastic equivalent to tissue, air and polystyrene," in *Second United Nations International Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy*. New York: United Nations, 1958, p. 160.
- [46] M. B. Chadwick, H. H. Barschall, R. S. Caswell, P. M. DeLuca, G. M. Hale, D. T. L. Jones, R. E. MacFarlane, J. P. Meulders, H. Schuhmacher, U. J. Schrewe, A. Wambersie and P. G. Young: A consistent set of neutron kerma coefficients from thermal to 150 MeV for biologically important materials. *Medical Physics* 26, 974-991, 1999.