# INSTYTUT FIZYKI JĄDROWEJ im. Henryka Niewodniczańskiego Polskiej Akademii Nauk ul. Radzikowskiego 152, 31-342 Kraków

www.ifj.edu.pl/publ/reports/2010/

Kraków, czerwiec 2010

Raport Nr 2045/D

# Opracowanie metody pomiaru wysokich dawek promieniowania jonizującego z zastosowaniem wysokoczułych detektorów termoluminescencyjnych LiF:Mg,Cu,P

# Barbara Obryk

Praca na stopień doktora nauk fizycznych, wykonana w Instytucie Fizyki Jądrowej im. Henryka Niewodniczańskiego PAN w Krakowie pod kierunkiem prof. dr hab. Pawła Olko

Kraków, czerwiec 2010 r.

Praca naukowa finansowana ze środków na naukę w latach 2008-2010 jako projekt badawczy nr N404156434

Pragnę serdecznie podziękować Promotorowi Pawłowi Olko za rady i wskazówki udzielane mi przy pisaniu niniejszej pracy, a także za okazaną wyrozumiałość.

Dziękuję również Pawłowi Bilskiemu za dzielenie się ze mną doświadczeniem i wiedzą w trakcie powstawania tej pracy.

Serdecznie dziękuję też wszystkim Koleżankom i Kolegom, którzy wspierali moje wysiłki i okazywali pomoc w każdej potrzebie.

Szczególnie gorąco dziękuję Edwardowi i Robertowi, za motywowanie mnie i cierpliwość okazywaną na co dzień.

# Development of a method for measurement of high doses of ionizing radiation using highly sensitive LiF:Mg,Cu,P thermoluminescent detectors

# Abstract

One of the well known advantages of thermoluminescence (TL) detectors made of lithium fluoride doped with magnesium, copper and phosphorus (LiF:Mg,Cu,P) is their very high sensitivity to ionizing radiation. LiF:Mg,Cu,P detectors enable measurements of radiation doses from tens of nanograys up to a few kilograys, when the total saturation of the signal of the so-called main dosimetric peak (at about 220°C) occurs. In 2006 for the first time the author observed unprecedented high-temperature emission of LiF detectors heated to temperatures up to 600°C, after exposures to radiation doses ranging from 1 kGy to 1 MGy. For quantification of the glow curve shape changes of LiF:Mg,Cu,P detectors in this range of doses and determination of the absorbed dose, the high temperature coefficient (UHTR) was defined.

This newly established dosimetric method was tested in a range of radiation qualities, such as gamma radiation, electron and proton beams, thermal neutron fields and in high-energy mixed fields around the SPS and PS accelerators at CERN. A number of dosimetric sets with LiF:Mg,Cu,P detectors are currently installed around the LHC at CERN. The new method for ultra-high dose range monitoring with a single LiF:Mg,Cu,P detector, which is capable of covering at least twelve orders of magnitude of doses, can be used for dosimetry at high energy accelerators, thermonuclear fusion technology facilities and has great potential for accident dosimetry in particular.

# Spis treści

1. Wprowadzenie i cel pracy	
1.1. Wprowadzenie	
1.2. Cel i zakres pracy	11
2. Dozymetria promieniowania jonizującego	12
2.1. Podstawowe wielkości dozymetryczne	12
2.1.1. Dawka pochłonięta – D [Gy]	12
2.1.2. Liniowy Przekaz Energii – LET [keV/µm]	13
2.1.3. Kerma w powietrzu - K <sub>a</sub> [Gy]	13
2.2. Dozymetria wysokodawkowa	
2.2.1. Obecnie stosowane metody dozymetrii wysokodawkowej	15
2.2.2. Zakresy pomiarowe różnych systemów dozymetrycznych	17
2.2.3. Dozymetria TL w zakresie wysokodawkowym	20
2.3. Podstawy dozymetrii termoluminescencyjnej (TL)	
2.3.1. Teoria zjawiska termoluminescencji	
2.3.2. Model Randalla – Wilkinsa dla kinetyki pierwszego rzędu	
2.3.3. Detektory termoluminescencyjne i ich ważniejsze własności	
2.3.3.1. Typy detektorów TL	
2.3.3.2. Własności detektorów TL.	
2.3.3.3. Względna wydajność detektorów 1L na cięzkie cząstki naładowa	ne 33
2.3.5.4. Metody analizy Krzywej Świecenia	
2.3.3.5.7 olimai udwek neutronowych metodą 1 L 2.3.3.6. Zależność odpowiedzi detektorów MTS i MCP od dawki	
promieniowania	38
3. Materiał i metoda	41
3.1. Przygotowanie detektorów termoluminescencyjnych	41
3.2. Technika odczytu	41
3.3. Opis przeprowadzonych eksperymentów	42
3.3.1. CO/IFJ PAN, Kraków i KAERI, Korea Pd	42
3.3.2. CEA-Saclay, Francja	
3.3.3. JINR, Dubna, Rosja	
3.3.4. KAERI, Korea Pd.	
3.3.5. ISL, Uppsala, Szwecja	
3.3.6. ICh1J, Warszawa	
3.5.7. Mater-Leionitz Laboratory, Garcning, Niemcy	46
3.3.0. FS, UEKIN, SZWAJCAFIA	
3.3.00. F 5-INNAD I	48 50
3 3 9 CERE CERN Szwajcaria	
3 3 10 Lublana Słowenia	

4. Krzywe świecenia i ich analiza	56
4.1. Krzywe świecenia w funkcji dawki dla różnych rodzajów i jakości	
promieniowania	56
4.1.1. Promieniowanie gamma	56
4.1.2. Elektrony	60
4.1.3. Protony	62
4.1.4. Neutrony termiczne i epitermiczne	69
4.1.5. Wysokoenergetyczne pola mieszane	70
4.2. Przesunięcie położenia piku wysokotemperaturowego 'B'	74
4.3. Dekonwolucja krzywych świecenia	76
4.4. Analiza spektralna widma termoluminescencji	83
4.5. Fading piku wysokotemperaturowego 'B'	89
5. Metoda pomiaru wysokich dawek promieniowania jonizującego za pomocą	
detektorów LiF:Mg,Cu,P	91
5.1. Trzy zakresy pomiaru dawek	91
5.2. Metoda pomiaru dużych dawek przy pomocy współczynnika UHTR	93
6. Testy i zastosowania metody w akceleratorowych polach promieniowania	98
6.1. Test metody w polu elektronowym	98
6.2. Zaproponowany zestaw pomiarowy	100
6.2.1. Kaseta pomiarowa z detektorami TL	100
6.2.2. Pasywny zestaw pomiarowy na potrzeby LHC	101
6.3. Testy w referencyjnym polu promieniowania CERF w CERN	102
6.4. Zastosowanie w polu mieszanym IRRAD6	106
6.5. Zastosowanie w eksperymencie COMPASS w CERN	108
6.6. Monitoring dawek promieniowania dla LHC i jego eksperymentów	110
7. Podsumowanie	113
Spis literatury	115
DODATEK A: Zabarwianie detektorów	121

# Lista skrótów użytych w pracy:

ALICE	"A Large Ion Collider Experiment", eksperyment LHC w CERN
ATLAS	"A Toroidal LHC ApparatuS", eksperyment LHC w CERN
<b>CEA Saclay</b>	Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) - Le CEA Saclay centre
-	pluridisciplinaire
CERF	The CERN-EU high-energy reference field
CERN	European Organization for Nuclear Research
CIEMAT	Centro de Investigaciones Energeticas, Medioambientales y Tecnologicas
CMS	"Compact Muon Spectrometer", eksperyment LHC w CERN
CNGS	CERN Neutrinos to Gran Sasso, eksperyment w CERN
CO	Centrum Onkologii
COMPASS	Common Muon and Proton Apparatus for Structure and Spectroscopy,
	eksperyment w CERN
FOM	Figure Of Merit
HPD	Hydrogen Pressure Dosemeter
IAEA	International Atomic Energy Agency
ICCHIBAN	InterComparison of Dosimetric Instruments for Cosmic Radiation with
	Heavy Ion Beams At the National Institute for Radiological Science in
	Chiba
IChTJ	Instytut Chemii i Techniki Jądrowej
ITER	International Thermonuclear Experimental Reactor
JET	Joint European Torus
KAERI	Korea Atomic Energy Research Institute
LET	Linear Energy Transfer
LHC	Large Hadron Collider
LHCb	"Large Hadron Collider beauty", eksperyment LHC w CERN
LHCf	"Large Hadron Collider forward", eksperyment LHC w CERN
LWPD	Laboratorium Wzorcowania Przyrządów Dozymetrycznych
MOSFET	Metal-Oxide Semiconductor Field-Effect Transistor
OSL	Optically Stimulated Luminescence
PAD	Polymer-Alanine Dosemeter
PIC	Precision Ionisation Chamber
PS	Proton Synchrotron
RADFET	Radiation-Sensing Field-Effect Transistor
RPL	Radio-Photoluminescence
KI SLUC	Room I emperature
SLHC	Super Large Hadron Collider
SPS	Super Proton Synchrotron
SSD TEDC	Silicon Scinulator Device
TEPC	Tissue Equivalent Proportional Counter
	Detalitar terme alumin accor aviny
I LU TOTEM	"TOTal areas sostian. Electic sostianing and diffusction dissociation
IUIEM	Monsurement? algorithment LHC w CEDN
TSI	The Svedberg Laboratory Unreals
I SL I HTP	Illtra-High-Temperature Ratio
VLHC	Very Large Hadron Collider
V LIIC HND	Vory Large Hauton Connuct Joint Institute for Nuclear Research (Dubna)
JIIN	Joint institute for Nuclear Research (Dublia)

#### - 7 -

#### Streszczenie

Jedną ze znanych dotychczas zalet detektorów termoluminescencyjnych z fluorku litu domieszkowanego magnezem, miedzią i fosforem, LiF:Mg,Cu,P, jest ich wysoka czułość na dawki promieniowania jonizującego. Detektory LiF:Mg,Cu,P umożliwiają pomiar dawki w zakresie od ok. 1 mikrogreja aż do ok. 1000 grejów (Gy), kiedy to następuje całkowite nasycenie sygnału tzw. głównego piku dozymetrycznego, występującego w temperaturze ok. 220°C. W 2006 roku autorka po raz pierwszy zaobserwowała i opisała wysokotemperaturową emisję detektorów LiF:Mg,Cu,P wygrzewanych do temperatur ok. 600°C, po ekspozycjach na dawki w zakresie od 1 kGy do 1 MGy. Dla kwantyfikacji zmian kształtu krzywej świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P w tym zakresie dawek i wyznaczenia dawki pochłoniętej, zdefiniowany został współczynnik wysokotemperaturowy (UHTR). Metoda ta była testowana dla szeregu pól promieniowania, takich jak promieniowanie gamma, wiązki elektronów, protonów, pola neutronów termicznych oraz w polach mieszanych wokół akceleratorów SPS i PS w CERN-ie. Obecnie, zestawy dozymetryczne z detektorami LiF:Mg,Cu,P są zainstalowane wokół urządzeń Wielkiego Zderzacza Hadronów (LHC) w CERN-ie.

Nowa metoda, w połączeniu z metodą wyznaczania dawki w oparciu o główny pik dozymetryczny, czyni LiF:Mg,Cu,P unikalnym detektorem, który umożliwia pomiar dawek w zakresie przynajmniej 12 rzędów wielkości, od około mikrogreja do megagreja. Głównym przyszłym zastosowaniem opracowanej metody są pomiary dawek wokół akceleratorów cząstek naładowanych, a także dozymetria awaryjna.

# 1. Wprowadzenie i cel pracy

#### 1.1. Wprowadzenie

W ostatnich latach budowane są urządzenia, które dla ochrony radiologicznej i dozymetrii stanowią całkiem nowe wyzwanie, odpowiedni dla nich monitoring wymaga pomiarów dozymetrycznych w bardzo szerokim zakresie dawek. Należą do nich wysokoenergetyczne akceleratory cząstek oraz reaktory syntezy termojądrowej. Sztandarowym przedstawicielem tej pierwszej grupy jest Large Hadron Collider (LHC, [LHC]), największy na świecie akcelerator cząstek, którego ponowny rozruch nastąpił w listopadzie 2009 roku w CERN (Europejskie Centrum Badań Jądrowych) w Genewie. Drugą natomiast reprezentuje budowany w Cadarache (Francja) ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor, [ITER]), w którym generowane strumienie szybkich neutronów będą 1000 razy większe niż w największej dotychczas instalacji w tym zakresie (JET – Joint European Torus).

Pracy akceleratorów wysokich energii towarzyszy powstawanie skomplikowanego pola promieniowania wtórnego. Zawiera ono naładowane hadrony, miony, neutrony, fotony i elektrony, przy czym ich widma energetyczne rozciągają się do setek GeV. Intensywność tego promieniowania może być bardzo duża. Na przykład dla eksperymentu CMS przy LHC w CERN, szacuje się, że moc dawki promieniowania w obszarze komór eksperymentalnych sięgnie 10 Gy/h dla świetlności 10<sup>33</sup> p/(cm<sup>2</sup>.s) [Huhtinen2003]. Planowana szczytowa świetlność LHC ma wynieść 10<sup>34</sup> p/(cm<sup>2</sup>s).



Rys. 1.1.1. Symulowane widma neutronów, protonów i pionów powstających w LHC [Vollaire2005; Vollaire2006].

Biorąc pod uwagę długotrwałą pracę akceleratora (dla LHC przyjmuje się 10 lat), tak duża moc dawki może prowadzić do uszkodzeń radiacyjnych aparatury eksperymentalnej, elektroniki, itp. W tunelu LHC i pomieszczeniach podziemnych znajduje się 20 000 modułów z podstawowa elektronika systemu sterowania LHC [Wijnands2003]. Dla przykładu kompaktowy solenoid mionów (CMS), stanowiący jeden z pięciu eksperymentów dla LHC, zawiera 24 328 czujników krzemowych [Furgeri2004]. Ilustruje to rozmiar problemu związanego z możliwością uszkodzeń i degradacji urządzeń elektronicznych w wyniku defektów radiacyjnych spowodowanych wysokimi dawkami. Innym przykładem mogą być słomkowe komory dryfowe eksperymentu ATLAS, które mogą ulegać starzeniu wskutek promieniowania oraz diody lawinowe wykorzystywane w eksperymencie CMS do odczytu kalorymetrów elektromagnetycznych [Ilgner2006]. Należy również brać pod uwage niedające się przewidzieć, ale niewykluczone zakłócenia wiązki, w wyniku których mogą pojawić się wysokie dawki w miejscach i czasie całkiem nieoczekiwanych [Silari2001]. Istnieje więc konieczność wykonywania pomiarów dawek promieniowania wewnatrz komór eksperymentalnych w tunelu akceleratora, wokół kolimatorów i detektorów. Sposób prowadzenia takich pomiarów nie jest jednak rzeczą prostą i oczywistą. Problemy dozymetryczne bardzo szybko rosną ze wzrostem energii przyspieszanych cząstek. Wiąże się to ze wzrostem krotności produkcji cząstek wtórnych. Wzrost energii oznacza również większe rozmiary przestrzenne akceleratora, a zatem rośnie liczba koniecznych punktów pomiarowych, co w przypadku kosztownych, aktywnych urządzeń pomiarowych bardzo podnosi koszty eksploatacji akceleratora. Ze względu na rozmiary urządzenia oraz skomplikowane rozkłady kątowe promieniowania liczba urządzeń dozymetrycznych potrzebnych do pełnego monitorowania pola promieniowania wokół wielkich akceleratorów, np. takich jak LHC w CERN, może być rzędu tysiąca. Rozwiązaniem tego problemu może być zastosowanie w systemie dozymetrycznym detektorów pasywnych (całkujących). Nie istnieje jednak gotowy do użycia uniwersalny, pasywny system dozymetryczny, który w pełni nadawałby się do pomiarów w tak szerokim zakresie dawek i mocy dawek.

Oprócz zróżnicowania mocy dawki promieniowania w otoczeniu akceleratora, istnieją dodatkowe trudności z przewidzeniem z góry jakiego rzędu dawkę będzie musiał zmierzyć dawkomierz umieszczany w konkretnym miejscu. Przyczyny tego są dwojakie. Po pierwsze, czas eksponowania dawkomierzy może być różny, nie zawsze możliwy z góry do przewidzenia. Typowy czas pomiarowy to 1–3 miesięcy. Niekiedy jednak koniecznym jest umieszczanie dawkomierzy w miejscach niedostępnych w czasie normalnej eksploatacji akceleratora i odczytywanie ich dopiero przy okazji większego przestoju technicznego, co może oznaczać czas ekspozycji znacznie przekraczający rok (i z góry nieznany). Również warunki pracy

akceleratora mogą ulegać zmianom (np. ze względu na przerwy techniczne w pracy, kierowanie wiązki do różnych pomieszczeń, itp.). Częste występowanie takich sytuacji jest przewidywane właśnie w przypadku LHC. Z drugiej strony, czasami, np. gdy przeprowadzane są próby ze zmianą warunków pracy akceleratora, niezbędne jest wykonanie pomiarów w znacznie krótszym czasie, nawet po kilkugodzinnej ekspozycji. Wtedy dawka jest oczywiście niższa, ale też nie zawsze możliwa do przewidzenia.

Dozymetria pól promieniowania wokół istniejących akceleratorów cząstek wysokich energii, prowadzona dla celów ochrony radiologicznej, realizowana jest zarówno przy pomocy i metod aktywnych jak pasywnych [Bilski2007; SilariEditor2006]. Liczniki mikrodozymetryczne (TEPC – Tissue Equivalent Proportional Counters) [Schmitz 1985], oraz komory rekombinacyjne [Golnik1999; Zielczyński2004], pozwalają na wyznaczanie jakości pola promienowania, m.in. składowych nisko- i wysokoletowych dawki. Do pomiarów samej składowej neutronowej stosuje się tzw. "remomierze" (czyli liczniki proporcjonalne napełnione BF3 lub <sup>3</sup>He, umieszczone wewnątrz moderatora, kalibrowane w jednostkach równoważnika dawki) oraz spektrometry neutronowe, wykorzystujące tzw. kule Bonnera. Wszystkie te przyrządy mają swoje ograniczenia, głównie jeśli chodzi o zakres mocy dawki promieniowania (nie są one przeznaczone do pomiarów bardzo dużych intensywności promieniowania) oraz o liczbę miejsc możliwych do monitorowania (ze względu na ich cenę, dostępność i dogodność używania). Nie można więc wyłącznie na nich oprzeć ciągłego monitoringu dozymetrycznego, zwłaszcza w dużej liczbie punktów, a w szczególności w krytycznych punktach formowania wiązki [Brugger2005].

Najpowszechniej stosowanym pasywnym dawkomierzem wysokodawkowym jest alanina, której typowy zakres pomiarowy to 10 Gy-200 kGy [Ravotti2006; Vincke2007]. Detektory RPL mogą być stosowane w zakresie 1–10<sup>5</sup> Gy [Ravotti2006; Vincke2007], aczkolwiek niektórzy autorzy zwracają uwagę na problemy z pomiarem w zakresie 100 Gy– 10 kGy [Ilgner2007]. Stosowane są również dawkomierze OSL w zakresie dawek od miligrejów do 100 Gy [Ravotti2006]. W CERN-ie, w wysokoenergetycznych polach mieszanych wokół akceleratorów cząstek, do pomiaru dawek w wysokim zakresie używa się zarówno alaniny, jak i detektorów RPL, albowiem ich zakresy się uzupełniają [Silari2005; Vincke2007]. Szeroko stosowane są też w CERN-ie tranzystory typu MOSFET, używane jako dawkomierze aktywne [Ravotti2006], ale ich zakres dawkowy to jedynie (w zależności od typu) od kilkudziesięciu mGy do kilkudziesięciu Gy, tylko dla niektórych ich typów rozciąga się on aż do kilku kilogrejów.

Monitorowanie dawek środowiskowych prowadzi się często z wykorzystaniem dawkomierzy opartych o detektory termoluminescencyjne, w których intesywność sygnału

luminescencyjnego po wygrzaniu detektora do temperatury ok. 250 C jest w pewnych zakresach proporcjonalna do dawki pochłoniętej [Bilski2002, Olko2006]. Detektory termoluminescencyjne LiF:Mg,Cu,P stają się ostatnio standardem nowoczesnej dozymetrii termoluminescencyjnej, wykazującym liniową odpowiedź z dawką w zakresie od mikrogreja do około kilku grejów, a całkowite nasycenie sygnału tzw. piku dozymetrycznego dla dawki ok. 1000 Gy [Bilski2002]. Detektory takie, pod nazwą MCP-N zostały opracowane w IFJ przez Tadeusza Niewiadomskiego w 1985 roku [Niewiadomski1991; Niewiadomski1994].

Nie ma obecnie uniwersalnej metody dozymetrii pasywnej, która umożliwiałaby pomiar zarówno dawek na poziomie mili- i mikrogrejów, jak i dziesiątek i setek kilogrejów.

#### 1.2. Cel i zakres pracy

Prowadząc wygrzewanie detektorów LiF:Mg,Cu,P do temperatury 600°C, eksponowanych do dawek powyżej 1 kGy, autorka po raz pierwszy zaobserwowała w ich krzywych świecenia nowy pik w obszarze wysokich dawek, nazwany pikiem 'B', który rośnie monotonicznie wraz z dawką.

Zasadniczym celem pracy było opracowanie metody pomiaru wysokich i bardzo wysokich dawek promieniowania przy użyciu pojedynczego detektora LiF:Mg,Cu,P (MCP-N) czułego również na bardzo niskie dawki. Chodziło o zaprojektowanie, przygotowanie i przetestowanie dawkomierza o zakresie pomiarowym od około jednego mikrogreja do około jednego megagreja, zdolnego do pomiaru w skomplikowanych, mieszanych polach promieniowania.

Dawkomierz o tak szerokim zakresie pomiarowym pozwalałby mierzyć dawki zarówno za, jak i przed osłonami, bez konieczności dobierania urządzenia do przewidywanej mocy dawki, okresu odczytów, czy potencjalnych, wielkich okresowych wzrostów dawek.

Rozwiązanie to mogłoby znaleźć zastosowanie m.in. w monitorowaniu dawek wokół akceleratorów pracujących na rzecz radioterapii i szeroko pojętych technologiach irradiacyjnych oraz dozymetrii wokół akceleratorów wysokich energii i termojądrowych reaktorów syntezy. Opracowanie tej metody dałoby możliwość szybkiego wdrożenia oryginalnego, polskiego opracowania w jednym z najbardziej prestiżowych współczesnych przedsięwzięć naukowych - LHC Dawkomierze tego typu mogłyby zostać zastosowane w dozymetrii wokół LHC i w planowanych na nim wielkich eksperymentach fizycznych (ALICE, ATLAS, CMS, LHCb, LHCf i TOTEM).

# 2. Dozymetria promieniowania jonizującego

Dozymetria promieniowania jonizującego jest dziedziną fizyki jądrowej i metrologii zajmującą się pomiarem, obliczeniami i analizą podstawowych wielkości związanych z przekazem energii promieniowania jonizującego do materii oraz zmienności ich wartości w czasie i przestrzeni. W zależności od rodzaju promieniowania i wartości dawki stosuje się do jej pomiaru różne metody. W tym rozdziale omówiono pokrótce podstawy dozymetrii, ze szczególnym uwzględnieniem dotychczas stosowanych systemów dozymetrii wysokodawkowej. Przedstawiono też podstawy dozymetrii termoluminescencyjnej.

#### 2.1. Podstawowe wielkości dozymetryczne

W dozymetrii promieniowania jonizującego i ochronie przed promieniowaniem stosuje się kilkadziesiąt wielkości dozymetrycznych charakteryzujących absorpcję energii promieniowania w materii. Wielkości te są zdefiniowane w wielu podręcznikach fizyki promieniowania i dozymetrii [Attix1986; Hrynkiewicz2001], tak więc w tym podrozdziale powtórzone zostały definicje tylko tych z nich, które były wykorzystywane w niniejszej pracy, a mianowicie dawka pochłonięta, Liniowy Przekaz Energii oraz kerma w powietrzu.

#### 2.1.1. Dawka pochłonięta – D [Gy]

Podstawową wielkością wyznaczaną w dozymetrii jest dawka pochłonięta w punkcie, definiowana jako ilość energii dostarczonej przez cząstki jonizujące, przypadającej na jednostkę masy napromienionej substancji w danym miejscu. Wzór na dawkę pochłoniętą zgodnie z tą definicją to:

$$D = \frac{dE}{dm} \tag{2.1.1.1}$$

gdzie: *dE* jest energią promieniowania jonizującego przekazaną materii w elemencie objętości, *dm* jest masą materii zawartą w elemencie objętości, której ta energia została przekazana.

Średnią dawką pochłoniętą przez daną substancję (D) nazywamy energię E przekazaną jednostce masy m tej substancji:

$$D = \frac{E}{m} \tag{2.1.1.2}$$

Jednostką dawki pochłoniętej w układzie SI jest grej (Gy):

$$1 \text{ Gy} = 1 \text{ J/kg}$$
 (2.1.1.3)

#### 2.1.2. Liniowy Przekaz Energii – LET [keV/µm]

Wielkość zwana Liniowym Przekazem Energii (ang. Linear Energy Transfer, LET) jest definiowana jako energia przekazana w materii:

$$L = \frac{\Delta E}{\Delta l} \tag{2.1.2.1}$$

gdzie  $\Delta E$  jest średnią energią przekazaną materii przez cząstkę naładowaną w oddziaływaniach z elektronami ośrodka,

 $\Delta l$  jest długością odcinka przebytej przez cząstkę drogi.

Wartość LET podaje się najczęściej w keV/µm lub MeV/cm.

#### 2.1.3. Kerma w powietrzu - K<sub>a</sub> [Gy]

Cząstki nienaładowane, np. neutrony, nie jonizują bezpośrednio, ale w wyniku ich oddziaływania z materią pojawiają się cząstki naładowane, np. wskutek odrzutu w reakcjach rozproszeń elastycznych, bądź emitowane jako produkty reakcji jądrowych wywołanych przez cząstki nienaładowane. Dotyczy to także fotonów, które rejestrowane są za pośrednictwem elektronów, uwalnianych w którymś z procesów oddziaływania fotonów z materią. Zjawiska wtórnej jonizacji przy obliczaniu dawek pochodzących od cząstek nienaładowanych uwzględnia wielkość zwana kermą.

Kerma (ang. Kinetic Energy Released in unit MAss) jest ilorazem sumy początkowych energii kinetycznych ( $dE_{tr}$ ) wszystkich naładowanych cząstek jonizujących, uwolnionych przez pośrednio jonizujące cząstki nienaładowane w odpowiednio małym elemencie objętości materiału, i masy materii dm w tym elemencie:

$$K_a = \frac{dE_{tr}}{dm} \tag{2.1.3.1}$$

Jednostką w układzie SI, tak jak w przypadku dawki pochłoniętej, jest grej.

Kerma jest to więc wartość oczekiwana energii przekazanej (E<sub>tr</sub>) cząstkom naładowanym, na jednostkę masy, przez cząstkę jonizującą pośrednio (najczęściej foton, neutron). Uwzględnia się tu straty energii przez promieniowanie (promieniowanie hamowania, anihilacja), ale wyłącza się energię przekazywaną przez cząstki naładowane innym cząstkom naładowanym. Należy zwrócić uwagę, że wartość dawki pochłoniętej może być mniejsza od kermy, bowiem energia pochłonięta w materiale może być mniejsza od sumy początkowych energii cząstek naładowanych. Dla przykładu, elektrony przechodząc przez materię zarówno wywołują jonizację jak i emisję promieniowania hamowania, które może opuścić materiał nie deponując tam swej energii.

#### 2.2. Dozymetria wysokodawkowa

W niniejszej pracy termin "dozymetria wysokodawkowa" stosowany jest dla określenia pomiarów dawek zwykle powyżej 1 kGy. Wysokodawkowa dozymetria jest ważnym działem dozymetrii, jej rozwój był stymulowany zastosowaniami promieniowania jonizującego do obróbki radiacyjnej (począwszy od sterylizacji materiałów chirurgicznych, co miało miejsce w latach 50-tych ubiegłego wieku). Ważną rolę na tym polu odegrała Międzynarodowa Agencja Energii Atomowej (IAEA) organizując serię konferencji i koordynując programy badawcze poświęcone tej tematyce [IAEA1999]. Wykorzystanie promieniowania jonizującego (głównie wiązek elektronów i silnych źródeł promieniowania gamma) do obróbki radiacyjnej ma bardzo szeroki zasięg w przemyśle, rolnictwie i medycynie [McLaughlin1999].

Z zastosowań obróbki radiacyjnej w przemyśle należy wymienić produkcję polimerów, kompozytów, gumy, elastomerów, kabli, materiałów i elementów termo-kurczliwych oraz zastosowania w elektronice, w technologii opakowań, przetwarzaniu i unieszkodliwianiu odpadów stałych, ciekłych i gazowych. W tych zastosowaniach często mamy do czynienia z dużymi mocami dawek, a pomiary te nierzadko muszą być prowadzone w urządzeniach o dużych gabarytach.

W rolnictwie zastosowania te dotyczą sterylizacji i przetwarzania żywności (m.in. dla wydłużenia jej przydatności do spożycia), ochrony przed szkodnikami, czy kontroli kwarantanny. Ważnym obszarem zastosowań dozymetrii wysokodawkowej jest sterylizacja materiałów i narzędzi stosowanych w medycynie.

Szczególne wyzwania dla dozymetrii wysokodawkowej wynikają z rozwoju akceleratorów cząstek wysokich energii (takich jak np. LHC w CERN, czy planowane akceleratory SLHC i VLHC), akceleratorów hadronów do radioterapii, a w niedalekiej przyszłości również spallacyjnych źródeł neutronów (jeszcze w tej dekadzie przewiduje się uruchomienie w Lund, Szwecja, European Spallation Source), dotyczy to także reaktorów jądrowych, zarówno opartych na rozszczepieniu jak i syntezie jądrowej. Te nowe wyzwania dotyczą nie tylko dozymetrii w szerokim zakresie dawek, ale również dozymetrii w polach mieszanych, gdzie często zarówno spektrum cząstek, jak i ich energie, obejmują bardzo szeroki zakres. Monitorowanie dawek w tym przypadku jest prowadzone nie tylko dla celów ochrony radiologicznej, ale obejmuje również ochronę urządzeń samych akceleratorów (głównie elektroniki) i materiałów przed uszkodzeniami radiacyjnymi, celem przewidzenia potencjalnego czasu niezawodnego ich funkcjonowania.

W związku z tymi rosnącymi potrzebami nastąpił i ciągle postępuje rozwój metod dozymetrii wysokodawkowej. Ich liczba jest bardzo duża, niektóre mają charakter bardziej

uniwersalny, ale większość jest przydatna w pewnych specjalnych zastosowaniach. W tym podrozdziale metody te zostaną pokrótce przedstawione.

# 2.2.1. Obecnie stosowane metody dozymetrii wysokodawkowej

Dozymetria wysokodawkowa posługuje się obecnie zarówno metodami znanymi i stosowanymi od dziesięcioleci, jak i tymi, które zostały wdrożone stosunkowo niedawno [McLaughlin1995; McLaughlin1999]. Systemy dozymetryczne, od dłuższego czasu szeroko stosowane w przetwarzaniu żywności i innych wymienionych wyżej przemysłowych zastosowaniach promieniowania, zostały wymienione w tabeli 2.2.1.1.

System	Metoda pomiaru	Zakres [kGy]
Kalorymetria	pomiar ciepła za pomocą termistorów lub termopar	0,001-50
Roztwory Fricke'go	spektrometria UV	0,02-0,40
Roztwory dichromowe	spektrometria UV lub optyczna	2,0-50
Cer i jego roztwory	spektrometria UV, optyczna, lub elektrochemiczna potencjometria	0,5-50
Roztwory radiochromowe	spektrometria optyczna	0,01-40
Roztwory etanolu chlorobenzenu	spektrometria optyczna lub przewodnictwo HF	0,02-2000
Pastylki lub filmy alaninowe	spektrometria EPR	0,001-100
Polimetakrylany	spektrometria optyczna	0,1-100
Filmy radiochromowe	densytometria lub spektrometria optyczna	0,1-100
Filmy z trójacetanem celulozy	spektrometria UV lub optyczna	5-1000
Monokryształy fluorku litu	spektrometria UV lub optyczna	0,5-20 000
Optyczny falowód radiochromowy	densytometria lub fotometria	0,01-10

Tabela 2.2.1.1. Systemy dozymetryczne szeroko stosowane w obróbce radiacyjnej [McLaughlin1995].

Rozwój metod dozymetrii wysokodawkowej dotyczy zarówno nowych materiałów, jak i nowych, często tańszych, metod odczytu. Do nowszych metod i systemów dozymetrii wysokodawkowej, wdrożonych do stosowania w przemyśle, rolnictwie i medycynie, można zaliczyć:

 pomiar koncentracji wolnych rodników – np. w alaninie za pomocą EPR, z zastosowaniem parafiny, poliolefinu lub silikonu jako spoiwa, zakres stosowalności 0,1-200 kGy;

- *filmy lub roztwory radiochromowe* sole tetrazolowe dla systemów ciekłych lub kliszowych dla szerokodawkowych zastosowań i filmy GafChromic dla relatywnie niskich dawek (radioterapia, naświetlania krwi), pomiar spektrofotometryczny; zakres stosowalności 0,001-50/100 kGy;
- roztwory i filmy barwnikowe wodne lub poliwinylowe roztwory alkoholu: niebieski metylen, pomarańczowy etylen i czerwone kongo, które bieleją pod wpływem naświetlania, co jest mierzone spektrofotometrycznie lub densytometrycznie. Mogą one być używane do wielkoskalowej dozymetrii faz ciekłych albo jako niedroga metoda dozymetrii przetwórstwa żywności; zakres stosowalności 0,05-30 kGy;
- systemy fotoluminescencyjne dozymetry filmowe do jednopunktowego lub dwuwymiarowego obrazowania, odczytywane za pomocą spektrofluorometrii, fosforowych systemów obrazowania lub tablic mikrodiod półprzewodnikowych; zakres stosowalności 0,1-100 kGy;
- polimery filmy polietylenowe odczytywane za pomocą ultrafioletu lub przy użyciu transformat Fouriera w spektrofotometrii podczerwieni; zakres stosowalności 0,1-10000 kGy;
- półprzewodniki lub chipy stałociałowe dwubiegunowe tranzystory p-FET lub MOSFET, czy też detektory diamentowe, jako aktywne lub pasywne dawkomierze dla szerokiego zakresu dawek i szerokiego zakresu mocy dawek; zakres stosowalności 0,001-100 kGy;
- *systemy konduktometryczne* roztwory lub stałe matryce, które mogą być odczytywane oscylometrycznie lub z wykorzystaniem konduktometrii stałociałowej.

Spośród przyrządów aktywnych w zakresie wysokich mocy dawek promieniowania, np. wewnątrz pomieszczeń akceleratora, używa się komór jonizacyjnych lub wchodzących w ostatnich latach do użycia detektorów diamentowych [Laub1999].

Najpowszechniej stosowanym pasywnym dawkomierzem wysokodawkowym jest alanina, której typowy zakres pomiarowy to 10 Gy-200 kGy. W wyniku napromieniania powstają w alaninie stabilne wolne rodniki, których ilość w znacznym zakresie jest proporcjonalna do pochłoniętej dawki. Krystaliczna struktura materiału dozymetru zapobiega rekombinacji rodników. Związany z upływem czasu ubytek sygnału wytwarzanego w alaninie obserwuje się dopiero dla wartości dawki powyżej 3 kGy i wynosi on kilka procent w skali roku. Do odczytu dawkomierzy alaninowych stosuje się spektrometrię elektronowego rezonansu paramagnetycznego (EPR) [Regulla1982, Regulla1999]. Polega ona na rezonansowym pochłanianiu energii pola magnetycznego o częstotliwości mikrofalowej przez substancje paramagnetyczne, tzn. zawierające cząstki (np. drobiny, rodniki, jony) o stałym elektronowym momencie magnetycznym, umieszczone w silnym polu magnetycznym. Pole magnetyczne powoduje zeemanowskie rozszczepienie poziomów energetycznych, a rezonansowe pole elektromagnetyczne wywołując przejścia między nimi zakłóca równowagę termodynamiczną, która jest przywracana przez relaksację paramagnetyczną. W przypadku alaniny mamy do czynienia ze spinami rodników generowanych przez promieniowanie. Warunkiem poprawności pomiaru jest długi czas życia rodników, a to może zostać zakłócone np. przez wzrost temperatury czy naprężenie dawkomierza [Pivovarov1999].

Ostatnio coraz bardziej popularna metodą pomiaru wysokich dawek staje się radiofotoluminescencja (RPL). Radiofotoluminescencyjna dozymetria polega na użyciu szkła fosforowego aktywowanego srebrem, które będąc po ekspozycji stymulowane promieniowaniem bliskiego ultrafioletu, emituje sygnał świetlny (światło pomarańczowe), proporcjonalny do pochłoniętej dawki [Perry1987]. W CERN-ie, w wysokoenergetycznych polach mieszanych wokół akceleratorów cząstek, do pomiaru dawek w wysokim zakresie używa się zarówno alaniny, jak i detektorów RPL [Silari2005; Vincke2007]. Szeroko stosowane są też w CERN-ie tranzystory półprzewodnikowe typu MOSFET, używane jako dawkomierze aktywne [Ravotti2006].

# 2.2.2. Zakresy pomiarowe różnych systemów dozymetrycznych

Pasywne systemy dozymetryczne możliwe do zastosowania wokół akceleratorów wysokoenergetycznych cząstek, w szczególności wokół LHC, to: dawkomierze polimerowoalaninowe (PAD), detektory radiofotoluminescencyjne (RPL), detektory ciśnienia wodoru (HPD), monokryształy LiF (LiF Crystal), detektory TL (TLD), i filmy barwnikowe (Dye Film) [Ravotti2006]. Podsumowanie cech tych dawkomierzy pasywnych używanych w pomiarach dawki zostało przedstawione w tabeli 2.2.2.1 [Ravotti2006]. Systemy aktywne używane wokół LHC są oparte na: detektorach RADFET (tranzystory polowe bazujące na dwutlenku krzemu), diodach p-i-n (półprzewodniki ze złączem warstw typu p-n, z wbudowaną pomiędzy nimi warstwą wewnętrzną niedomieszkowaną), oraz detektorach OSL [Ravotti2006].

Na rysunkach 2.2.2.1 i 2.2.2.2 przedstawiono zakresy dawek (wg różnych autorów), które można mierzyć za pomocą różnych pasywnych systemów dozymetrycznych, rozważanych do dozymetrii wokół LHC. Na rysunku 2.2.2.2 są one dodatkowo porównane z zakresami dawek rocznych szacowanych dla różnych urządzeń/składowych eksperymentu CMS, jednego z sześciu eksperymentów LHC w CERN.

<u> </u>	
6	
Ō	
2	
-12	
Ħ	
2	
a	
2	
Ĺ	
.1	
1	
a	
ά,	
Ч	
୍ର	
ra	
a.	
Ē.	
5	
ā	
>	
$\geq$	
ų,	
- X	
Ē.	
a	
\$	
$\sum_{i=1}^{n}$	
Ľ.	
Ξ	
Ċ	
► N	
E	
1	
S.	
a,	
d	
N.	
D	
ē	
Ē	
Ы	
X	
3	
<u>a</u>	
р	
Ч	
Sec	
ŭ	
O	
Ξ.	
a	
≥	
Q	
В	
n	
ds S	
ō	
Ъ	
C.	
<i>c</i> i	
2	
а	
ē	
d b	
Ĕ	

Typ dawkomierza	PAD	RPL	ЦРD	TLD	Fricke	PMMA	Gafchromic
Zakres dynamiczny [Gy]	10 - 10 <sup>5</sup> tkankopodobn	$10^{-1} - 10^{6}$	$10^{4} - 10^{7}$	10 <sup>-5</sup> - 10 <sup>-1</sup>	$20 - 2x10^2$	$10 - 10^4$	$10^{-1} - 10^{2}$
Odpowiedź energetyczna dla promieniowania γ	zaniżona dla E<120keV	zawyżona dla E<500keV	zaniedbywalna	zawyżona dla E<100keV dla pewnych typów	zawyżona dla E<500keV	nieznana	zaniedbywalna
Odpowiedź energetyczna dla neutronów	czułość 0,4 dla 1 MeV, 0,6 dla 8 MeV, 0,7 dla 14 MeV	czułość 0,9 dla termicznych, 0,01 dla szybkich		<sup>7</sup> Li-brak czułości, <sup>6</sup> Li- czułość na n termiczne			
Fading	zerowy dla RT i 40-60% wilgotności powietrza	1% na trzy miesiące dla RT; czuły na światło	zaniedbywalny	zaniedbywalny	brak	ważna czułość na światło	kilka %
Metoda odczytu	EPR	luminescencja (światło UV)	ciśnienie	luminescencja (grzanie)	spektrofotomet ria	absorpcja optyczna	densytometria
Zalety	organiczny	wielokrotnego użytku	dobry dla b.dużych dawek	wielokrotnego użytku	używany jako standard	tani i łatwy w odczycie	b. łatwy w odczycie
Wady		trudny odczyt w zakresie kGy	nieczuły na małe dawki	zakres dawek niskich	czuły na temperaturę i wilgotność		



Rys. 2.2.2.1. Zakresy dawkowe różnych pasywnych systemów dozymetrycznych wg Fuerstnera [Fuerstner2005].



Rys. 2.2.2.2. Zakresy dawkowe różnych pasywnych systemów dozymetrycznych porównane z zakresami dawek rocznych szacowanych dla różnych urządzeń eksperymentu CMS w CERN wg Ilgnera [Ilgner2007].

Żadna z prezentowanych powyżej pasywnych metod pomiarowych, nie obejmuje zarówno zakresu dawek typowych dla ochrony radiologicznej, jak i zakresu dawek wysokich (kilogrejów).

#### 2.2.3. Dozymetria TL w zakresie wysokodawkowym

Większość stosowanych w praktyce detektorów TL wykazuje liniową charakterystykę do dawki 1 Gy. Dla dawek wyższych charakterystyki ulegają deformacjom i stają się nad- lub pod-liniowe i wreszcie dla dawek powyżej 1000 Gy następuje nasycenie sygnału (rys. 2.2.3.1). W praktyce, przy rutynowych pomiarach wykonywanych w automatycznych czytnikach TL, zakres jest dodatkowo ograniczony dynamiką samego czytnika i do pomiarów dawek rzędu 1 Gy trzeba używać filtrów osłabiających strumień fotonów docierający do fotopowielacza.



Rys. 2.2.3.1. Charakterystyki dawkowe czterech typów TLD, wyrażone jako indeks liniowości f(D)=(sygnał TL)/(dawka), znormalizowany do dawki 1 Gy [Olko2006].

Podejmowane były już próby znalezienia materiałów termoluminescencyjnych nadających się do pomiarów bardzo wysokich dawek. Próbowano w tym celu wykorzystać np. kwarc [Vaijapurkar1998] lub takie związki jak SiO<sub>2</sub>:Ce czy YPO<sub>4</sub>:Ce [Barthe1993]. Materiały te jednak, jeśli nawet nadawały się do pomiarów w zakresie kilku lub kilkudziesięciu kGy, to miały czułość zbyt słabą by móc je zastosować w zakresie grejów, nie mówiąc o dawkach jeszcze niższych. Badane były też pod tym kątem detektory TL z Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub> domieszkowane różnymi kombinacjami następujących pierwiastków: Cu, In, Mn, Ag, P [Prokić2001]. Mimo dużego zakresu mierzonych dawek (dla Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Mn zakres ten wynosi 10<sup>-3</sup> – 10<sup>5</sup> Gy), materiały te nie weszły do powszechnego użytku ze względu na samoistny spadek sygnału w czasie (fading) dochodzący do 5%/3 miesiące, silnie zależny od wilgotności otoczenia. Podejmowano również badania możliwości zastosowania LiF:Mg,Ti (TLD-100) do pomiaru dawek do 10 kGy [Monteño-Garcia2006], jednak wyników nie można uznać za obiecujące. Nie było jednakże do tej pory żadnych prób wykorzystywania do pomiarów wysokich dawek detektorów LiF:Mg,Cu,P, wykazujących nasycenie sygnału głównego piku dozymetrycznego dla dawek około 1 kGy.

### 2.3. Podstawy dozymetrii termoluminescencyjnej (TL)

Dozymetria termoluminescencyjna to gałąź dozymetrii promieniowania jonizującego oparta na pomiarach detektorami TL. W tym podrozdziale opisane zostało zjawisko termoluminescencji i jego matematyczny opis za pomocą modelu Randalla – Wilkinsa. Przedstawione zostały też typy detektorów TL, ich ważniejsze własności i metody analizy związane z detektorami TL.

#### 2.3.1. Teoria zjawiska termoluminescencji

Termoluminescencja (inaczej termicznie stymulowana luminescencja) to zjawisko wyświecania (luminescencji) domieszkowanej substancji krystalicznej, poddanej wcześniej działaniu promieniowania jonizującego lub światła, po jej podgrzaniu [Hrynkiewicz2001]. Ze względu na czynnik wzbudzający jest rodzajem radioluminescencji [Wrzesińska1974], a ze względu na mechanizm wyświecania jest fosforescencją przyspieszoną podwyższoną temperaturą. Można ją zaobserwować tylko raz, podczas pierwszego podgrzewania. Ponownie można ten efekt zaobserwować dopiero po uprzednim napromienieniu kryształu, czyli dostarczeniu mu nowej porcji energii. Zjawisko to obserwuje się głównie w dielektrykach, ale również w materiałach organicznych [Mandowska2004].

Zjawisko termoluminescencji zostało opisane po raz pierwszy przez Roberta Boyle'a w 1663 r. Zaobserwował on emisję światła z diamentu podgrzanego do temperatury ciała ludzkiego [Boyle1663]. Dopiero ponad dwieście lat później, w 1904 roku, nasza rodaczka, Maria Skłodowska-Curie zaobserwowała i opisała termoluminescencję naturalnego fluorku wapnia, poddanego ekspozycji na promieniowanie radu, co stanowi pierwszą wzmiankę łączącą zjawisko termoluminescencji z ekspozycją na promieniowanie jonizujące. W swojej rozprawie doktorskiej napisała, że naturalny fluorek wapnia (CaF<sub>2</sub>) świeci przy podgrzewaniu i natężenie światła jest tym większe im dłużej substancja ta leżała obok źródła radowego [Skłodowska1904]. Ale prawdziwy rozwój termoluminescencji oraz praktycznych zastosowań tego zjawiska w dozymetrii nastąpił dopiero pod koniec pierwszej i w drugiej połowie dwudziestego wieku. Wówczas też powstała pierwsza teoria zjawiska termoluminescencji [Randall1945a, Randall1945b].

Pasmowa teoria przewodnictwa ciał stałych [Encyklopedia1972], opiera się na założeniu, że w czasie powstawania ciała stałego poziomy energetyczne swobodnych atomów rozszczepiają się, tworząc w ten sposób pasma blisko siebie leżących poziomów. W rezultacie widmo energetyczne kryształu składa się z dozwolonych pasm energii o skończonej szerokości,

podczas gdy dla izolowanych atomów mamy do czynienia z dyskretnymi poziomami. W idealnym krysztale wyróżnia się dwa pasma dozwolone:

- pasmo walencyjne (pasmo podstawowe) zakres energii jaką posiadają elektrony walencyjne związane z jądrem atomu, pasmo to jest całkowicie zapełnione elektronami,
- pasmo przewodnictwa zakres energii jaką posiadają elektrony walencyjne uwolnione z atomu, będące wówczas nośnikami swobodnymi w ciele stałym, pasmo to jest puste, ale jego zapełnienie jest dopuszczalne w świetle praw mechaniki kwantowej.

Dolna granica pasma przewodnictwa jest położona powyżej górnej granicy pasma walencyjnego. Przerwa energetyczna pomiędzy tymi pasmami jest nazywana *pasmem zabronionym* (wzbronionym) lub przerwą zabronioną (rys. 2.3.1.1). Umownie przyjęto zaliczać kryształy o szerokości przerwy energetycznej powyżej 3 eV do dielektryków, a o szerokości tej przerwy poniżej 3 eV do półprzewodników. W sytuacji gdy szerokość przerwy energetycznej wynosi 0, czyli pasmo walencyjne nakłada się na pasmo przewodnictwa, kryształ nazywamy metalem.

W idealnym krysztale dielektryka zjawisko termoluminescencji nie mogłoby zajść z powodu szerokiej przerwy energetycznej. W rzeczywistości jednak ze względu na obecność szeregu defektów sieci, struktura dielektryka nie jest nigdy idealna. Defekty (zwane *pułapkami*) wprowadzają dodatkowe poziomy energetyczne do pasma zabronionego. Rodzaj i koncentrację defektów w krysztale można kontrolować poprzez domieszki obcych jonów. W obszarze przerwy energetycznej w miejscach wad sieci krystalicznej występują lokalne poziomy (pułapki) *elektronowe* bliskie poziomowi pasma przewodnictwa oraz poziomy (pułapki) *dziurowe* bliskie pasmu walencyjnego. *Pułapki dziurowe*, będące centrami rekombinacji, łączą się w trakcie podgrzewania z uwalnianymi z pułapek elektronami, które w trakcie tego procesu oddają energię w postaci kwantów światła termoluminescencji.

Zjawisko termoluminescencji jest więc procesem dwuetapowym, w którym ekspozycja i odczyt mogą być oddalone od siebie w czasie. Etapy te może dzielić długi okres czasu dochodzący czasem do setek tysięcy czy milionów lat. Pierwszy etap następuje w momencie poddania materiału termoluminescencyjnego ekscytacji za pomocą promieniowania jonizującego lub światła, która wybija elektrony z pasma walencyjnego lub pasm głębszych, czyli powoduje jonizację i przeniesienie ich do pasma przewodnictwa. Pewna część tych elektronów z pasma przewodnictwa może przejść do pułapek elektronowych, zaś dziury pozostałe po elektronach migrując w paśmie walencyjnym przechodzą częściowo do pułapek dziurowych. W zależności od roli jaką pełnią poszczególne poziomy pułapkowe określamy je mianem pułapek aktywnych, pułapek głębokich i tzw. centrów rekombinacji. Tak więc na zakończenie pierwszego etapu zjawiska TL mamy pewną liczbę zapełnionych pułapek elektronowych i dziurowych, która jest w pewnym zakresie proporcjonalna do zaabsorbowanej energii/dawki.

W drugim etapie procesu TL, w wyniku podgrzania, elektrony z pułapek zostają przeniesione do pasma przewodnictwa, z którego rekombinują do centrów rekombinacji zawierających zapułapkowane nośniki przeciwnego znaku (pułapki/centra dziurowe). Elektrony w procesie rekombinacji oddają energię w postaci kwantów światła (rys. 2.3.1.1), dzięki czemu substancja wraca do stanu podstawowego (równowagi). Do uwolnienia pułapkowanych nośników potrzebna jest energia co najmniej równa różnicy między poziomem pułapki a pasmem przewodnictwa (gdy "aktywnymi nośnikami" są elektrony). Dla "typowych" materiałów termoluminescencyjnych (używanych w dozymetrii TL) różnica tych poziomów musi być większa od energii promieniowania cieplnego w temperaturze pokojowej, a mniejsza od energii promieniowania cieplnego w temperaturze kilkuset stopni.



Rysunek 2.3.1.1. Pasmowy model struktury energetycznej dielektryka wraz z procesem jonizacji i termicznego wzbudzenia luminescencji [Bos2007, Puchalska2008].

W materiałach TL mamy też do czynienia z procesami konkurencyjnymi do procesu rekombinacji, prowadzącymi do spadku wydajności zjawiska TL [McKinlay1981;

Niewiadomski1991]. Do procesów tych zaliczamy np. rekombinacje elektronu z dziurą bez emisji światła czy też ponowne związanie elektronu w pułapce elektronowej, duża liczba elektronów uczestniczy w przebiegach dających w wyniku rozpraszanie pierwotnie pochłoniętej energii w postaci energii cieplnej.

#### 2.3.2. Model Randalla – Wilkinsa dla kinetyki pierwszego rzędu

Rozważania dotyczące modelowania istoty zjawiska TL rozpoczęły się od konstrukcji tzw. prostego modelu pułapkowego (STM – simple trap model), w którym przyjęto jednonośnikowy model kinetyki z jednym typem aktywnych pułapek. Rozważając warunki quasi-równowagi Randall i Wilkins otrzymali analityczne rozwiązanie, które uzyskało nazwę kinetyki pierwszego rzędu (first order kinetics).

W modelu tym zakłada się istnienie jedynie dwu poziomów energetycznych w paśmie zabronionym i zaniedbywalne wtórne pułapkowanie [Randall1945a; 1945b]. Prawdopodobieństwo na jednostkę czasu przekazania układowi co najmniej energii  $E_a$ , przewyższającej energię wiązania elektronów w pułapkach, w temperaturze bezwzględnej T podlega rozkładowi Boltzmanna, a wyrazić je można wzorem Arrheniusa [Bos2007]:

$$p = s \times \exp(-E_a / kT) \tag{2.3.2.1}$$

gdzie:

k – stała Boltzmanna, 1,381 x 10<sup>-23</sup> [J/K] = 8,61 x 10<sup>-5</sup> [eV/K],

s – współczynnik częstotliwościowy charakterystyczny dla rodzaju materiału w [s<sup>-1</sup>]. Czynnik ten jest powiązany z przekrojem czynnym pułapki na wychwyt elektronu z pasma przewodnictwa (typowe wartości w zakresie 10<sup>12</sup> - 10<sup>14</sup> [s<sup>-1</sup>]).

 $E_a$  – energia wiązania pułapki (energia aktywacji) w [eV],

T-temperatura bezwzględna [K].

Aczkolwiek powrót do stanu równowagi jest zawsze możliwy, to dla niskich temperatur stan ten jest metastabilny i będzie istniał przez nieskończenie długi okres czasu, określony przez parametry E<sub>a</sub> i s. Tak więc dla niskich temperatur prawdopodobieństwo powrotu do równowagi jest małe. Podnosząc odpowiednio temperaturę materiału można ten powrót przyspieszyć. Natężenie sygnału TL (światła) emitowanego podczas takiej termicznie stymulowanej luminescencji jest proporcjonalne do szybkości rekombinacji elektronów i dziur w centrach rekombinacji:

$$I(t) = -\frac{dn_d}{dt} \qquad [m^{-3}s^{-1}]$$
(2.3.2.2)

gdzie znak ujemny oznacza spadek liczby dziur. Zakłada się, że każda rekombinacja produkuje foton światła i że wszystkie produkowane fotony są rejestrowane. Szybkość rekombinacji jest proporcjonalna do koncentracji wolnych elektronów w paśmie przewodnictwa  $n_p$  i do koncentracji dziur  $n_d$ :

$$\frac{dn_d}{dt} = -n_p n_d A_r \tag{2.3.2.3a}$$

gdzie stała  $A_r$  jest prawdopodobieństwem rekombinacji wyrażonym w jednostkach objętości na jednostkę czasu, z założenia niezależnym od temperatury. Z kolei szybkość zmiany koncentracji pułapkowanych elektronów  $n_e$  jest równa szybkości termicznego ich wzbudzenia pomniejszonej o szybkość wtórnego pułapkowania:

$$\frac{dn_{e}}{dt} = -n_{e}p + n_{p}(N - n_{e})A$$
(2.3.2.3b)

gdzie N jest koncentracją pułapek elektronowych, a stała A jest prawdopodobieństwem wtórnego pułapkowania, określonym w jednostkach objętości na jednostkę czasu [m<sup>3</sup>s<sup>-1</sup>]. Podobnie szybkość koncentracji swobodnych elektronów jest równa szybkości ich termicznego wzbudzenia w pułapce elektronowej pomniejszonej o szybkość wtórnego ich pułapkowania i szybkość rekombinacji:

$$\frac{dn_{p}}{dt} = n_{e}p - n_{p}(N - n_{e})A - n_{p}n_{d}A_{r}$$
(2.3.2.3c)

Układ równań różniczkowych 2.3.2.3a, 2.3.2.3b i 2.3.2.3c stanowi podstawę wielu analiz zjawiska TL, ale nie da się go rozwiązać analitycznie bez przyjęcia pewnych upraszczających założeń, nazwanych przez Chena i McKeevera przybliżeniami quasirównowagi, jako że wymagają one, aby koncentracja wolnych elektronów w paśmie przewodnictwa była quasi stacjonarna [Chen1997]:

$$\left|\frac{dn_c}{dt}\right| << \left|\frac{dn}{dt}\right|; \quad \left|\frac{dn_c}{dt}\right| << \left|\frac{dn_h}{dt}\right|$$
(2.3.2.4)

Spułapkowane elektrony i dziury produkowane są w parach podczas procesu jonizacji. Zasada zachowania ładunku dyktuje więc, aby  $n_p + n_e = n_d$ . Ponieważ  $n_p << n_e$  to  $n_e \approx n_d$ . Po zastosowaniu powyższych założeń z równań tych wynika, że:

$$I(t) = -\frac{dn_d}{dt} \approx -\frac{dn_e}{dt} \quad [m^{-3}s^{-1}]$$
 (2.3.2.5)

Na podstawie równań 2.2.2.3 - 2.2.2.5 otrzymujemy:

$$I(t) = \frac{n_d A_r n_e p}{(N - n_e)A + n_d A_r}$$
(2.3.2.6)

Randall i Wilkins, zakładając zaniedbywalne pułapkowanie wtórne elektronów uwalnianych z pułapek  $(n_d A_r \gg (N - n_e)A)$ , sprowadzili równanie 2.3.2.6 do równania [Randall1945a; Ranadall1945b]:

$$I(t) = n_e \cdot p = n_e(t) \cdot s \cdot \exp(-E/kT)$$
(2.3.2.7)

Równanie 2.3.2.7 opisuje transport ładunku w sieci krystalicznej jako proces o kinetyce pierwszego rzędu. Dla stałej temperatury (T=const) prawdopodobieństwo p przekazania układowi co najmniej energii E, przewyższającej energię wiązania elektronów w pułapkach, na jednostkę czasu, wyrażone równaniem (2.3.2.1) jest stałe i natężenie luminescencji po scałkowaniu równania (2.3.2.7) po n<sub>e</sub>(t) wyraża się jako:

$$I(t) = n_e(t=0) \cdot s \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \cdot \exp\left(-s \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \cdot t\right)$$
(2.3.2.8)

czyli:

$$I(t) = I_0 \exp(-tp)$$
(2.3.2.9)

gdzie  $I_0$  jest natężeniem początkowym dla czasu t=0, wyrażonym wzorem:

$$I_0 = n_e(t=0) \cdot s \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$
(2.3.2.10)

Tak więc w stałej temperaturze rozpad jest eksponencjalną funkcją czasu.

Jeśli temperatura zmienia się w czasie to p nie jest stałe i rozwiązaniem równania różniczkowego (2.3.2.7) jest:

$$I(t) = -\frac{dn_e}{dt} = n_e(t=0) \cdot s \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT(t)}\right) \times \exp\left\{-s\int_0^t \exp\left(-\frac{E}{kT(t')}\right) dt'\right\}$$
(2.3.2.11)

gdzie  $n_e(t=0)$  jest całkowitą liczbą strapowanych elektronów w czasie t=0. Natężenie luminescencji ma więc wówczas kształty piku zwanego pikiem świecenia pierwszego rzędu.

W pomiarach dozymetrycznych temperatura podnoszona jest zwykle liniowo w funkcji czasu,  $T(t) = T_0 + \beta \cdot t$ , ze stałą szybkością grzania  $\beta = \frac{dT'}{dt}$  [K·s<sup>-1</sup>]. Wówczas natężenie światła luminescencji jest funkcją temperatury:

$$I(T) = -\frac{1}{\beta} \frac{dn_e}{dt} = n_0 \cdot \frac{s}{\beta} \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \times \exp\left\{-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right\}$$
(2.3.2.12)

Wykres zmiany natężenia świecenia luminescencyjnego w funkcji temperatury jest nazywany termoluminescencyjną krzywą świecenia.

Równanie (2.3.2.12) jest nazywane równaniem Randalla-Wilkinsa dla kinetyki pierwszego rzędu z liniowym profilem grzania [Randall1945a; Randall1945b]. Pik świecenia ma charakterystyczny asymetryczny kształt, jest 'szerszy' od strony niskich temperatur. Używając aproksymacji Chena [Chen1984] można to równanie zapisać używając parametrów piku świecenia łatwych do eksperymentalnego wyznaczenia, takich jak  $I_m$  i  $T_m$ , czyli odpowiednio natężenie w maksimum piku i położenie tego maksimum na osi temperatur [Kitis1998]:

$$I(t) = I_m \exp\left[1 + \frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m} - \frac{T^2}{T_m^2} \times \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) \cdot (1 - \Delta) - \Delta_m\right]$$
(2.3.2.13)

gdzie  $\Delta = 2kT/E$ , a  $\Delta_m = 2kT_m/E$ . Ta postać równania jest wykorzystywana do celów dopasowywania piku świecenia luminescencyjnego.

Równanie Randalla-Wilkinsa zostało wyprowadzone dla modelu (2.3.2.3) zakładającego istnienie w materiale jednego rodzaju jednorodnie rozłożonych pułapek elektronowych i centrów rekombinacji, czyli jednego piku termoluminescencyjnego. Jest ono relatywnie proste, ale opisuje wyidealizowane zjawisko termoluminescencji, zakładając brak wtórnego

pułapkowania. Mimo to kształt krzywej termoluminescencyjnej opisanej tym równaniem jest zgodny z kształtem większości mierzonych, rzeczywistych pików TL dla materiałów TL stosowanych w praktyce [Bos1993; McKeever1985]. Powstało wiele innych modeli opisujących zjawisko TL. Należy do nich model przejść zlokalizowanych (*Localized Transitions* - LT) [Halperin1960; Land1969], zakładający przestrzenną korelację pomiędzy centrami pułapkowymi a rekombinacyjnymi. Materiał termoluminescencyjny jest rozważany jako układ niezależny z wewnętrznym ruchem ładunków, ale bez przejścia elektronów do pasma przewodnictwa. Jak wykazano [Land1969; Chen1976], nawet przy dużym udziale pułapkowania wtórnego, krzywa TL ma zawsze charakter kinetyki pierwszego rzędu i jest dobrze przybliżana za pomocą równania Randalla-Wilkinsa. Pewnym rozszerzeniem tego modelu jest stworzony przez Mandowski2005], w modelu tym też często otrzymuje się rozwiązania w postaci równania Randalla-Wilkinsa [Mandowski2006]. Tak więc równanie kinetyki pierwszego rodzaju nie tylko dobrze opisuje piki TL dla rzeczywistych materiałów TL, ale też jest teoretycznie dobrze uzasadnione.

W praktyce niewiele materiałów termoluminescencyjnych charakteryzuje się krzywą świecenia z pojedynczym pikiem TL, krzywe rzeczywiste składają się z wielu pików TL, często nakładających się na siebie. Dla takich krzywych natężenie termoluminescencji jest sumą tylu wyrażeń (2.3.2.13) ile pików TL występuje w krzywej. Typowa krzywa świecenia dla detektora MCP-N wraz z numerycznym rozkładem na poszczególne piki składowe została przedstawiona na rysunku 2.3.2.1.



Rysunek 2.3.2.1. Doświadczalna krzywa świecenia dla detektora LiF:Mg,Cu,P wraz z rozkładem na indywidualne piki. Detektor naświetlony dawką 1,5 mGy od promieniowania gamma, odczytany w warunkach liniowego grzania z szybkością 2°C/s [Bilski2002].

#### 2.3.3. Detektory termoluminescencyjne i ich ważniejsze własności

Detektory termoluminescencyjne zostały po raz pierwszy zastosowane w dozymetrii promieniowania jonizującego przez Farirngtona Danielsa z Uniwersytetu Wisconsin, USA, podczas testów jądrowych w 1950 roku [Wikipedia]. Od tego czasu nastąpił ogromny rozwój dozymetrii TL, związany z takimi ich cechami jak możliwe małe i bardzo małe wymiary (standard 4,5 x 0,9 mm, ale możliwe nawet < 1 mm<sup>3</sup>, dzięki czemu nie zakłócają pól promieniowania), brak konieczności zewnętrznego zasilania, tym samym okablowania (pasywność detekcji), odporność na większość czynników środowiskowych, w tym i promieniowanie elektromagnetyczne (tylko bardzo wysoka temperatura jest czynnikiem ograniczającym), nieczułość na przeciążenia, szeroki zakres mierzonych dawek, jak też praktycznie nielimitowany czas pomiaru (lata).

Jak pokazano na fotografii 2.3.3.1, detektory TL mogą mieć postać proszku lub spieków ceramicznych o różnych rozmiarach. Najczęściej stosowane detektory TL są wytwarzane na bazie LiF, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaF<sub>2</sub>, CaSO<sub>4</sub> [McKeever1995].



Rysunek 2.3.3.1. Detektory termoluminescencyjne w różnych postaciach, opracowane i produkowane w IFJ PAN.

# 2.3.3.1. Typy detektorów TL

Wśród detektorów TL najpowszechniej stosowanym materiałem jest fluorek litu. Istnieje kilka typów detektorów na bazie tego związku, przede wszystkim LiF:Mg,Ti (MTS) i LiF:Mg,Cu,P (MCP) [Niewiadomski1991; Bilski2002, Horowitz1993, McKeever1995]. Ich zaletą jest wysoka czułość, stabilne własności oraz zbliżona do tkanki charakterystyka energetyczna dla promieniowania fotonowego. Poza litem naturalnym (zawierającym 92,5% <sup>7</sup>Li i 7,5% <sup>6</sup>Li) do produkcji detektorów używa się też fluorku litu wzbogaconego lub zubożonego w izotop <sup>6</sup>Li, otrzymując w ten sposób dla każdego typu trzy podtypy (np. dla MCP: MCP-N, MCP-6 i MCP-7). Stosowane, choć znacznie rzadziej właśnie ze względu na brak tkankorównoważności, są również siarczany i fluorki wapnia domieszkowane Dy lub Tm oraz tlenek glinu domieszkowany C.

#### • Detektory MTS

Standardem wśród detektorów na bazie fluorku litu jest detektor LiF:Mg,Ti, którego własności TL zostały odkryte w latach czterdziestych ubiegłego stulecia. W latach 60-tych ubiegłego wieku, Tadeusz Niewiadomski z zespołem opracował technologię produkcji detektorów LiF:Mg,Ti (12 ppm Ti, 200 ppm Mg) w postaci spiekanych tabletek o średnicy 4,5 mm i grubości od 0,4 do 0,9 mm. Stanowi on już standard wśród detektorów TL i jest najlepiej poznanym detektorem TL stosowanym w dozymetrii promieniowania jonizującego, tak więc własności innych detektorów TL porównuje się z jego własnościami. Detektory MTS-N wykazują liniową zależność sygnału od dawki do ok. 1 Gy, a zanik sygnału w czasie w temperaturze pokojowej wynosi kilka procent rocznie [Niewiadomski1991]. Ze względu na tkankopodobność detektory te są szeroko stosowane w dozymetrii indywidualnej i środowiskowej.

#### Detektory MTT

W 2003 roku, poprzez zmiany stężenia domieszek Mg i Ti opracowano w IFJ nowy typ detektora na bazie LiF (LiF:Mg,Ti), nazwany MTT [Bilski2004]. Różni się on od detektora MTS koncentracją domieszek, zawiera prawie trzykrotnie mniej magnezu i dziesięciokrotnie więcej tytanu niż standardowy detektor MTS. MTT-N wykazuje podwyższoną wydajność na promieniowanie wysokojonizujące, ale jego czułość jest ok. 2,5 razy mniejsza niż detektorów MTS, co utrudnia pomiary dawek niższych niż 1 mGy [Bilski2004].

# • Detektory MCP

Pod koniec lat siedemdziesiątych ubiegłego stulecia został opracowany detektor LiF:Mg,Cu,P [Nakajiama1978]. W roku 1985 Niewiadomski opracował w IFJ wysokoczuły detektor MCP-N, prawie trzydziestokrotnie czulszy od standardowego detektora MTS. Nowy detektor wykazuje też ponad trzykrotnie niższe tło własne, co pozwala na pomiar stukrotnie niższych dawek promieniowania. Zostało wykazane eksperymentalnie, że przy pomocy

detektorów MCP można zmierzyć dawki już na poziomie 200 nGy [Budzanowski1996], co było dotychczas nieosiągalne dla innych typów dawkomierzy pasywnych. Jego odpowiedź na dawkę jest liniowa do kilku Gy [Bilski2007] i charakteryzuje się też słabym zanikiem sygnału w czasie. Do tej pory uważano, że wadą tych detektorów jest ich wysoka wrażliwość na nieprawidłową obróbkę termiczną, albowiem podgrzanie tego detektora powyżej 270°C prowadzi do utraty czułości o kilkadziesiąt procent [McKeever1991, Moskovitch1999]. Samoistny zanik sygnału w czasie w temperaturze pokojowej wynosi dla tego detektora ok. 5% rocznie [Bilski2002].

#### 2.3.3.2. Własności detektorów TL

Z punktu widzenia zastosowań dozymetrycznych detektorów TL ważne są takie ich własności jak czułość detektora, płaska charakterystyka energetyczna (tkankopodobność), szeroki zakres liniowej odpowiedzi detektora z dawką oraz możliwie najmniejszy zanik sygnału TL w czasie (fading).

#### • Czułość detektora

Czułość detektora to scałkowane natężenie sygnału TL wyemitowanego przez detektor na jednostkę pochłoniętej dawki. Czułość detektora jest powiązana z charakterystyką aparatury pomiarowej, np. fotopowielacza czy stosowanej filtracji sygnału, prędkości grzania, czy też obróbki termicznej stosowanej w danym przypadku, czyli anilacji przed i poekspozycyjnej.

#### Liniowość charakterystyki dawkowej

Dla większości detektorów TL odpowiedź w funkcji dawki jest liniowa do około kilku Gy, kiedy to staje się ona nadliniowa lub podliniowa aż do wysycenia sygnału detektora [Bilski2007]. Odpowiedź TL w funkcji dawki można opisać funkcją zwaną indeksem liniowości:

$$f(D) = \frac{S(D)/D}{S(D_1)/D_1}$$
 2.3.3.2.1

gdzie S(D),  $S(D_l)$  to wskazania detektorów odpowiednio dla dawki D i  $D_l$ , przy czym dawka  $D_l$  jest dawką w zakresie liniowości detektora. W obszarze dawek, gdzie f(D)=1, wskazanie detektora jest liniowe z dawką, tam gdzie f(D)>1 mamy obszar nadliniowości odpowiedzi, a tam gdzie f(D)<1 obszar podliniowości

### • Zanik sygnału TL w czasie (fading)

Zanik sygnału TL w czasie pomiędzy ekspozycją a odczytem, który powoduje zmniejszenie efektu wywołanego przez ekspozycję na promieniowanie jonizujące, nazywamy fadingiem. Jest to cecha detektora ważna z punktu widzenia jego zastosowań do długotrwałych pomiarów małych dawek, np. tła naturalnego. Przyczyną fadingu są samoistne procesy rekombinacji, zachodzące z wyższą wydajnością przy rosnącej temperaturze oraz działanie światła.

#### Tkankopodobność

Tkankopodobność na promieniowanie rentgenowskie i gamma jest określana przez efektywną liczbę atomową materiału detektora, Z<sub>ef</sub>, wyrażoną wzorem [Furetta1998]:

$$Z_{ef} = \left(\sum_{i=1}^{n} u_i Z_i^{3,6}\right)^{1/3,6}$$
(2.3.3.2.2)

gdzie  $u_i$  oznacza udział i-tego pierwiastka o liczbie atomowej  $Z_i$  w materiałe detektora. Materiał detektora jest uznawany za tkankopodobny, jeśli  $Z_{ef}$  jest zbliżone do  $Z_{ef}$  tkanki, wynoszącego 7,42.

#### • Względna wydajność TL

Względna wydajność termoluminescencji to stosunek sygnału detektora TL dla danego promieniowania (*S*) na jednostkę dawki (*D*), do sygnału tego detektora dla promieniowania referencyjnego ( $S_{\gamma}$ ) na jednostkę dawki ( $D_{\gamma}$ ):

$$\eta_{\gamma} = \frac{S/D}{S_{\gamma}/D_{\gamma}} \tag{2.3.3.2.3}$$

Promieniowaniem referencyjnym jest zwykle promieniowanie gamma źródeł <sup>137</sup>Cs lub <sup>60</sup>Co.

#### • Tło własne

Tło własne to sygnał detektora nienaświetlonego, wyrażony w jednostkach dawki. Dla wygrzanych detektorów MCP-N, odczytywanych w czytniku termoluminescencyjnym RA-94, wynosi ono przeciętnie kilkaset nGy.

#### 2.3.3.3. Względna wydajność detektorów TL na ciężkie cząstki naładowane

Względna wydajność detektorów TL na ciężkie cząstki naładowane (Heavy Charge Particles – HCP) jest przedmiotem intensywnych badań od kilkudziesięciu lat. Zauważono, ze wydajność detektora MTS na ogół spada ze wzrostem LET, silnie zależy od gęstości jonizacji jak też od rodzaju i energii cząstek. Horowitz stwierdził, że wartości tej wydajności otrzymane przez różne grupy badawcze znacznie się różnią [Horowitz2006] i konieczna jest odpowiednia interpretacja tych wyników, uwzględniająca różne procedury pomiarowe, techniki wygrzewania detektorów, itp., aby te różnice zmniejszyć. Prowadzono także obliczenia tej wydajności opierając się na modelu mikrodozymetrycznym, analizującym mikroskopowy rozkład depozycji energii w detektorach (rys. 2.3.3.3.1; [Olko2002]). Powstało też szereg modeli opartych na teorii radialnego rozkładu dawki wokół toru cząstki, które starały się opisywać odpowiedź detektorów TL (np. [Waligórski1980]).



Rysunek 2.3.3.3.1. Względna wydajność TL detektora MTS-N dla monoenergetycznych jonów, obliczona przy użyciu modelu mikrodozymetrycznego i porównana z danymi eksperymentalnymi [Olko2004].

Rysunek 2.3.3.2 przedstawia wyniki pomiarów wydajności detektorów MTS-7, MTT-7 i MCP-7 w funkcji LET promieniowania dla eksperymentów z serii ICCHIBAN (InterComparison of Dosimetric Instruments for Cosmic Radiation with Heavy Ion Beams At the National Institute for Radiological Science in Chiba), które zostały przeprowadzone w latach 2002-2004 [Bilski2006]. W dozymetrii promieniowania mieszanego poprawne wyznaczenie dawki pochłoniętej na podstawie sygnału detektora jest zadaniem trudnym. W polach o silnej komponencie z niskim LET oraz w polach monoenergetycznych jonów o niskim LET, można osiągnąć zgodność dawek obliczonych z rzeczywistymi na poziomie kilku procent [McKeever2006].



Rysunek 2.3.3.3.2. Zależność względnej wydajności TL od LET promieniowania dla detektorów MTS, MTT oraz MCP. Punkty przedstawiają dane pomiarowe z eksperymentów ICCHIBAN z lat 2002-2004 [Bilski2006].

#### 2.3.3.4. Metody analizy krzywej świecenia

Krzywa świecenia będąca wynikiem odczytu detektora TL może być analizowana na kilka sposobów [Attix1986; Chen1997; McKeever1995]. Poniżej omówiono strukturę krzywych świecenia dla detektorów MTS i MCP oraz przedstawiono krótko podstawowe metody analizy stosowane w pracy.

# • Struktura krzywej świecenia

Na rysunkach 2.3.3.4.1, 2.3.3.4.2 i 2.3.3.4.3 przedstawiono krzywe świecenia dla detektorów MTS i MCP z rozkładem na pojedyncze piki składowe. Generalnie krzywa świecenia składa się z trzech obszarów, obszaru pików niskotemperaturowych (które są

skutecznie usuwane dzięki poekspozycyjnemu wygrzewaniu detektorów (zwyczajowo w temperaturze 100-120°C), obszar pików główny, używanych do pomiarów dozymetrycznych (pik 5 dla MTS i pik 4 dla MCP), oraz obszar pików wysokotemperaturowych (piki 6, 7 i 8 widoczne na rys. 2.3.3.4.2).



Rysunek 2.3.3.4.1. Doświadczalna krzywa świecenia dla detektora LiF:Mg,Ti wraz z rozkładem na indywidualne piki. Detektor naświetlony dawką 10 mGy od promieniowania gamma (<sup>60</sup>Co) i odczytany w warunkach liniowego grzania z szybkością 6°C/s [Puchalska2008].



Rysunek 2.3.3.4.2. Doświadczalna krzywa świecenia dla detektora LiF:Mg,Ti wraz z rozkładem na indywidualne piki. Detektor naświetlony jonami żelaza w eksperymencie ICCHIBAN [Puchalska2008a].



Rysunek 2.3.3.4.3. Doświadczalna krzywa świecenia dla detektora LiF:Mg,Cu,P wraz z rozkładem na indywidualne piki. Detektor naświetlony dawką 1,5 mGy od promieniowania gamma, odczytany w warunkach liniowego grzania z szybkością 2°C/s [Bilski2002].

#### • Całkowanie krzywej świecenia

Jedna z prostszych metod analizy krzywych świecenia używana w pracy to całkowanie sygnału TL w ustalonych granicach temperaturowych, odpowiadających położeniu pików dozymetrycznych (głównych), takich jak piki 4, 5 i 5a, oczywiście w przybliżeniu, albowiem utrudniają to zadanie piki wysokotemperaturowe, które nakładają się na obszar pików głównych. Niestabilne temperaturowo piki niskotemperaturowe, też stwarzające problemy, albowiem nie jest łatwo je oddzielić od obszaru pików głównych, są usuwane z krzywej świecenia poprzez wygrzewanie (anilację) poekspozycyjne, przez 10-30 minut w temperaturach 100-120°C.

#### • Dekonwolucja krzywej świecenia

Ponieważ krzywa świecenia jest zazwyczaj krzywą złożoną, będącą sumą od kilku do kilkunastu pojedynczych pików, więc naturalną metodą jej analizy jest tzw. dekonwolucja. Dekonwolucja polega na rozkładzie krzywej świecenia na poszczególne piki składowe, opisywane takimi parametrami jak amplituda piku,  $I_{max}$ , położenie maksimum piku,  $T_{max}$ , pole powierzchni pod pikiem,  $\Sigma I$ , jak również energia wiązania danego rodzaju pułapki elektronowej odpowiedzialnej za dany pik,  $E_a$  (energia aktywacji).

Krzywe świecenia przedstawione na rysunkach 2.3.3.4.1, 2.3.3.4.2 i 2.3.3.4.3, wraz z ich rozkładem na pojedyncze piki składowe są zgodne z terminologią zaproponowaną przez
Horowitza [Horowitz1995]. Ponieważ zwykle poszczególne piki składowe krzywej świecenia nakładają się na siebie w znaczącym stopniu, więc dekonwolucja nie jest jednoznacznym procesem analizy krzywej. W wyniku dekonwolucji danej krzywej świecenia możemy dostać różne liczby i parametry pojedynczych pików składowych, jeśli bowiem położenie i liczba pików nie jest *a priori* znane, to nawet bardzo dobre dopasowanie pików do krzywej świecenia niekoniecznie musi oznaczać jej poprawną dekonwolucję.

Do dekonwolucji krzywych świecenia stosuje się wiele programów [Bos1993; Bos1994], z których najczęściej używane to powstały w CIEMAT program GCA (Glow Curve Analysis) [Delgado2001], czy komercyjny program PeakFit<sup>®</sup> [SYSTAT]. Dekonwolucję krzywych świecenia dla detektorów MCP-N przeprowadzili: Bilski i Puchalska [Bilski(Obryk)2007; Bilski,Obryk2008] stosując program GlowFit [Puchalska2006] oraz Kitis [Kitis,Obryk2009] przy użyciu programu MINUIT z biblioteki cernowskiej [MINUIT].

## 2.3.3.5. Pomiar dawek neutronowych metodą TL

Do produkcji detektorów na bazie fluorku litu poza litem naturalnym (92,5% Li-7 i 7,5% Li-6) używa się fluorku wzbogaconego, jak też i zubożonego w izotop Li-6. Detektory z Li-6 mają wysoki przekrój czynny na wychwyt neutronów termicznych poprzez reakcję  ${}^{6}\text{Li}(n,\alpha){}^{3}\text{H}$ , podczas gdy detektory z Li-7 są praktycznie nieczułe na neutrony w tym zakresie energii (rys. 2.3.3.5.1). Różnica w wysokości piku głównego (lub pola powierzchni) krzywych świecenia dla detektorów z Li-7 i Li-6 umieszczonych w tym samym punkcie pomiarowym (metoda par), wynikająca z różnicy przekrojów czynnych Li-7 i Li-6 na wychwyt neutronów termicznych, pozwala na obliczenie wkładu od neutronów termicznych do całkowitego sygnału detektora TL w danym punkcie pomiarowym (zilustrowano to na rys. 2.3.3.5.2, wykorzystując pomiary własne autorki). Kalibrując te różnice odpowiedzi detektorów z Li-7 i Li-6 w jednostkach dozymetrycznych można w pewnych warunkach określić wartość dawki od neutronów [Cameron1968].



Rys. 2.3.3.5.1. Przekrój czynny na wychwyt neutronów dla izotopów <sup>6</sup>Li oraz <sup>7</sup>Li [Plotter2.0]



Rys. 2.3.3.5.2. Krzywe świecenia dla detektorów MCP-7 i MCP-6 umieszczonych w tej samej próbce podczas eksperymentu na reaktorze TRIGA Mark II w JSI w Lublanie. Próbka naświetlona strumieniem neutronów termicznych 3x10<sup>11</sup>n/cm<sup>2</sup> i odczytana z szybkością grzania 2°C/s.

# 2.3.3.6. Zależność odpowiedzi detektorów MTS i MCP od dawki promieniowania

W pomiarze dawki metodą TL wykorzystuje się zależność (najczęściej w pewnym obszarze liniową) między dawką pochłoniętą *D* i mierzonym sygnałem TL:

$$D = N I$$
, (2.3.3.6.1)

gdzie I – sygnał TL, N-stała/współczynnik kalibracyjny.

W większości przypadków jako sygnał termoluminescencji *I* wykorzystuje się scałkowaną, w wybranym zakresie temperatur, krzywą TL. Zależność ta może być stosowana tylko w ograniczonym zakresie dawek, rodzajów i energii promieniowania. W rzeczywistości, w celu określenia dawki pochłoniętej, konieczne jest zastosowanie wielu współczynników korekcyjnych, które biorą pod uwagę m.in. nieliniowość charakterystyki dawkowej, poprawkę na energię i spadek sygnału w czasie (fading).

Jak wspomniano rozdziale 2.3.3.2 zakres liniowości charakterystyki dawkowej detektora jest ważną jego cechą z punktu widzenia zastosowań dozymetrycznych. Na rysunku 2.3.3.6.1 przedstawiono charakterystykę dawkową detektorów LiF:Mg,Cu,P dla głównego piku dozymetrycznego (występującego w temperaturze ok. 200°C). Odpowiedź detektora MCP-N na promieniowanie gamma ze źródła <sup>137</sup>Cs nasyca się eksponencjalnie z dawką przy około 1000 Gy.



Rys. 2.3.3.6.1. Charakterystyka dawkowa detektorów LiF:Mg,Cu,P zmierzona dla głównego piku dozymetrycznego (występującego w temperaturze ok. 200°C).

Rysunki 2.3.3.6.2 i 2.3.3.6.3 przedstawiają charakterystyki dawkowe detektorów: odpowiednio LiF:Mg,T i LiF:Mg,Cu,P, wyrażone jako indeks liniowości f(D)=(sygnał TL)/(dawka), znormalizowany do dawki 1 Gy [Obryk&Bilski2007]. Odpowiedź detektorów MTS na dawkę jest liniowa w zakresie od mGy do kilku Gy, a w zakresie od kilku Gy do ok. 1 kGy detektory te wykazują nadliniowość odpowiedzi, po czym sygnał ulega wysyceniu. Natomiast obszar liniowej odpowiedzi detektorów MCP rozciąga się od ułamków mikrogreja do kilku Gy, a w zakresie od kilku Gy do około 1 kGy odpowiedź tych detektorów na dawkę jest podliniowa, po czy następuje wysycenie sygnału.



Rys. 2.3.3.6.2. Charakterystyka dawkowa detektorów LiF:Mg,Ti, wyrażona jako indeks liniowości f(D)=(sygnał TL)/(dawka), znormalizowany do dawki 1 Gy [Obryk&Bilski2007].



Rys. 2.3.3.6.3. Charakterystyka dawkowa detektorów LiF:Mg,Cu,P, wyrażona jako indeks liniowości f(D)=(sygnał TL)/(dawka), znormalizowany do dawki 1 Gy [Obryk&Bilski2007].

Na rysunku 2.3.3.6.4 przedstawiono schemat zakresu pomiaru dawek za pomocą obu rodzajów detektorów. W obszarze zakreskowanym pomiar dawek tymi detektorami jest możliwy przy uwzględnieniu korekty nadliniowości detektorów LiF:Mg,Ti i podliniowości detektorów LiF:Mg,Cu,P. W obszarze dawek powyżej 1 kGy, gdzie następuje faktyczne nasycenie sygnału, pomiar dawki na podstawie piku dozymetrycznego nie jest możliwy.



Rys. 2.3.3.6.4. Schemat przedstawiający zakresy pomiaru dawek za pomocą detektorów LiF:Mg,Ti (niebieska linia) i LiF:Mg,Cu,P (czerwona linia). Obszary zakreskowane to zakresy dawek gdzie pomiar tradycyjnymi metodami jest możliwy przy uwzględnieniu korekty nadliniowości detektorów LiF:Mg,Ti i podliniowości detektorów LiF:Mg,Cu,P.

# 3. Materiał i metoda

W rozdziale tym scharakteryzowane zostały typy detektorów wykorzystywane w pracy oraz omówione techniki przygotowywania detektorów do ekspozycji i ich odczytu stosowane podczas badań. Omówione zostały również eksperymenty przeprowadzone dla celów realizacji pracy.

# 3.1. Przygotowanie detektorów termoluminescencyjnych

Celem realizacji pracy przygotowanych zostało kilka tysięcy różnego typu detektorów termoluminescencyjnych, wykonanych techniką spiekania na bazie fluorku litu: natLiF:Mg.Cu.P (MCP-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7), <sup>nat</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-7), jak również pewna liczba <sup>6</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-6), <sup>6</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-6), przy czym produkcję detektorów MCP-N powtórzono, ze względu na wyczerpanie w trakcie pracy zasobów z pierwszej produkcji, liczącej około 1500 detektorów. Tak więc część eksperymentów została wykonana z zastosowaniem detektorów MCP-N z produkcji 1 (P1), jeden eksperyment z udziałem detektorów pochodzących z obu produkcji w każdej próbce, a następne eksperymenty były już kontynuowane z zastosowaniem detektorów z produkcji 2 (P2). Detektory zostały wyprodukowane w Zakładzie Fizyki Radiacyjnej i Dozymetrii IFJ przy współudziale autorki pracy. Zastosowano detektory o typowych wymiarach: średnicy 4,5 mm oraz grubości 0.9 mm. Autorka poddała detektory obustronnemu polerowaniu ręcznemu i opisała je rysikiem grafitowym. Następnie wszystkie detektory zostały poddane typowej procedurze wstępnej, dwufazowej obróbki termicznej, zwanej anilacją wstępną, dostosowanej do rodzaju detektora (MCP - 260°C/10min.+240°C/10min., MTS - 400°C/1h+100°C/2h). Każdorazowo, po poszczególnych ekspozycjach a przed odczytem detektorów, stosowano też anilację poekspozycyjną (100°C/10min.), mającą na celu opróżnienie pułapek tworzących piki niskotemperaturowe, czyli eliminację tych pików z uzyskiwanych krzywych świecenia.

## 3.2. Technika odczytu

Odczyty przeprowadzono przy użyciu laboratoryjnego czytnika termoluminescencyjnego RA'94 (Microlab) z fotopowielaczem bialkalicznym i filtrem fioletowym (BG-12). Czytnik laboratoryjny umożliwia odczyt pojedynczego detektora, umieszczonego w specjalnym łożu ruchomej szuflady czytnika, grzanego oporowo z zadanym profilem i prędkością narastania temperatury.

Do celów projektu zmodyfikowano czytnik RA'94 tak, aby umożliwić wygrzewanie detektorów powyżej 400°C, czyli powyżej standardowego zakresu temperaturowego jego pracy.

Przystosowano łoże mieszczące detektor podczas procesu grzania tak, aby pozwalało stosować temperatury do 600°C, jak również wymieniono element grzejny czytnika i termoparę, umożliwiającą ciągły pomiar temperatury podczas grzania. Konieczne było też dostosowanie oprogramowania sterującego czytnikiem do poszerzonego zakresu temperatur grzania, dokonano takiego upgradu.

W ramach projektu prowadzano naświetlania w zakresie dawek wysokich i bardzo wysokich (aż do 1 MGy), stąd uwalniany w procesie odczytu detektorów sygnał (w postaci fotonów światła) był bardzo intensywny. Aby więc umożliwić prawidłową pracę fotopowielacza czytnika TL, wykonany został filtr mechaniczny, w postaci metalowej przesłony z mikroskopijnym otworem, który umieszczany nad detektorem podczas odczytów umożliwiał ograniczenie sygnału docierającego do fotopowielacza do 0,0079% emitowanego strumienia, pozwalając tym samym na niezakłóconą pracę fotopowielacza.

## 3.3. Opis przeprowadzonych eksperymentów

Celem wyznaczenia charakterystyki dawkowej detektorów LiF:Mg,Cu,P dla dawek do ok. 1 MGy przeprowadzono dziesięć eksperymentów, zarówno w monoenergetycznych polach promieniowania różnego typu, jak i w polach mieszanych, w szczególności w mieszanych polach wysokoenergetycznych. W tym podrozdziale zostały omówione eksperymenty przeprowadzone dla celów tej pracy.

## 3.3.1. CO/IFJ PAN, Kraków i KAERI, Korea Pd.

Pierwszy eksperyment przeprowadzono w CO/IFJ PAN w Krakowie i w KAERI w Korei Płd., naświetlając detektory promieniowaniem gamma ze źródła <sup>60</sup>Co (KAERI, zakres 10–10000 Gy; CO/IFJ PAN, zakres 1-10 Gy). Naświetlono detektory LiF:Mg,Cu,P oraz LiF:Mg,Ti (zarówno MTS, jak i MTT). Ekspozycje w Krakowie (CO i IFJ PAN) przeprowadzono za pomocą źródła terapeutycznego <sup>60</sup>Co na stanowisku do radioterapii Theratron 780, a w Korei za pomocą wysokiej mocy panoramicznego irradiatora <sup>60</sup>Co z tzw. mokrym przechowywaniem źródła (wet source storage irradiator, rys.3.3.1.1).

W napromieniaczach z systemem mokrego przechowywania źródła, radioaktywne źródło zamknięte przechowywane w wodzie, jest automatycznie wznoszone za pomocą przenośnika do pomieszczenia, gdzie następuje naświetlanie próbek w powietrzu, a następnie źródło jest obniżane z powrotem do basenu. W tego typu irradiatorach grube mury z betonu lub stali zapewniają ochronę pracowników w czasie gdy źródła znajdują się poza basenem. Niepewności pomiaru dawek dla tej instalacji wynoszą ok. 5%.



Rys. 3.3.1.1. Stanowisko eksperymentalne w KAERI z wysokiej mocy iradiatorem <sup>60</sup>Co (źródło przechowywane w basenie wodnym) [KAERI].

# 3.3.2. CEA-Saclay, Francja

Następny eksperyment przeprowadzono w CEA-Saclay, naświetlając detektory promieniowaniem gamma ze źródła <sup>60</sup>Co, produkcji francuskiej firmy CIS-bio. Naświetlono około 150 detektorów LiF:Mg,Cu,P w zakresie dawek 750 Gy ~ 38,6 kGy. Dozymetria tych naświetlań zastała wykonana przez Ewangelię Dimovasili z CERN-u (informacja własna), dla wyższych dawek został wykonany pomiar referencyjny za pomocą detektorów alaninowych. Niepewność wyznaczenia dawki wynosiła 3-5%.

#### 3.3.3. JINR, Dubna, Rosja

Ponad 100 detektorów różnych typów (<sup>nat</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-N), <sup>nat</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-7), <sup>7</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7)) zostało naświetlonych w JINR w Dubnej w polu neutronów termicznych o strumieniach w zakresie 1x10<sup>4</sup>-1x10<sup>5</sup> neutronów/(cm<sup>2</sup>.s). Czasy ekspozycji nie pozwoliły na uzyskanie dawek wyższych od kilku grejów. Eksperyment ten pozwolił na przetestowanie możliwości detekcji neutronów termicznych i epitermicznych za pomocą metod TL, aczkolwiek uzyskane dawki były zbyt małe, aby przetestować zachowanie tych detektorów przy wysokich dawkach neutronów termicznych i dać przyczynek do opracowywanej metody pomiaru (wyniki te nie zostały opublikowane).

#### 3.3.4. KAERI, Korea Pd.

Ponieważ w czasie eksperymentu w Saclay nie udało się uzyskać dawek przekraczających 38,6 kGy, dla których spodziewano się dalszych jakościowych zmian w krzywej świecenia detektorów MCP, powtórzone zostały naświetlania promieniowaniem gamma ze źródła kobaltowego w KAERI, Korea Pd (instalacja została omówiona w rozdziale 3.3.1). Były to naświetlania obejmujące dużo szerszy zakres dawek, z gęstszym jego pokryciem. W sumie około 500 detektorów kilku typów (<sup>nat</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7) oraz <sup>7</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-7)) zostało naświetlonych dawkami od 0,5 kGy do 500 kGy (0,5 kGy; 1 kGy; 5 kGy; 10 kGy; 20 kGy; 50 Gy; 100 kGy; 200 kGy; 500 kGy). Niepewności pomiaru dawek nie przekraczały 5%.

# 3.3.5. TSL, Uppsala, Szwecja

100 detektorów różnych typów (<sup>nat</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-N), <sup>nat</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-7), <sup>6</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7)) zostało naświetlonych w TSL (The Svedberg Laboratory) w Uppsali (rys. 3.3.5.1) wiązką neutronów o energii 180 MeV i strumieniu (w piku) 8,8x10<sup>4</sup>neutronów/(m<sup>2</sup>.s). Na rysunku 3.3.5.1 uwidoczniono próbkę TLD w czasie naświetlań na stanowisku eksperymentalnym w TSL w Uppsali.



TLD

Rys. 3.3.5.1. Stanowisko eksperymentalne w Uppsali na wiązce neutronowej o energii 180 MeV.

#### 3.3.6. IChTJ, Warszawa

Ekspozycje wysokodawkowe z wykorzystaniem akceleratora elektronów służącego do sterylizacji przeprowadzone zostały w Instytucie Chemii i Techniki Jądrowej w Warszawie. Fantom z próbkami oraz kalorymetr polistyrenowy umieszczano w aluminiowym pojemniku ustawionym na transporterze i przesuwano pod wiązką elektronów. Energia wiązki wynosiła 10 MeV, elektrony były emitowane w impulsach 5 µs z częstotliwością 300 Hz, a wiązka elektronów przemiatała transporter z próbkami z częstotliwością 5 Hz [Peimel-Stuglik2008]. Szybkość transportera, dobierana stosownie do wymaganej dawki, była skorelowana na zasadzie sprzężenia zwrotnego z prądem wiązki. Zakres uzyskanych dawek wynosił od 5 kGy do 1000 kGy (4,96; 9,66; 19,31; 46,48; 75,18; 94,00; 144; 198,4; 293,7; 401,6; 504,5; 1006,4). Dawki podawano w sposób frakcjonalny, ze względu na ich duże wartości eksperyment trwał kilka miesięcy. Zdjęcie próbek z detektorami przygotowanymi do naświetlań przedstawia rysunek 3.3.6.1.

Dozymetria była prowadzona przy użyciu standardowych kalorymetrów polistyrenowych (LPDT). Wszystkie kalorymetry były kalibrowane przy pomocy dawkomierzy EPR-alaninowych z National Physical Laboratory (Teddington, UK). W przypadku próbki o najwyższej postulowanej dawce (1 MGy) korzystano także z rutynowych dawkomierzy grafitowych używanych w Stacji Sterylizacji. Dla tej próbki dokładność określenia dawki wynosiła 3,8%, na co składały się standardowa niepewność kalibracji kalorymetru (3,5%), niepewność związana z chwilowymi zmianami prądu wiązki (1,0%), niepewność związana z chwilowymi zmianami szybkości transportera (0,1%) oraz niepewność wynikająca z różnic w położeniu próbki i termistora kalorymetru w stosunku do okna akceleratora (1,0%). Dla wszystkich pozostałych próbek standardowa niepewność określenia dawki była mniejsza i wynosiła 3,0%, albowiem niepewność kalibracji kalorymetru przy tych dawkach wynosiła jedynie 2,6%.



Rys. 3.3.6.1. Próbki z detektorami TL przygotowane do naświetlań na akceleratorze elektronów w IChTJ.

# 3.3.7. Maier-Leibnitz Laboratory, Garching, Niemcy

Detektory LiF:Mg,Cu,P poddano naświetlaniom protonami o energii 25 MeV w Maier-Leibnitz Laboratory w Garching, Niemcy (rys. 3.3.7.1). Detektory TL tworzyły dwuwymiarową matrycę ustawioną prostopadle do wiązki (w kilku jej przekrojach) (rys. 3.3.7.2). W eksperymencie tym naświetlono 100 detektorów dwu typów: <sup>nat</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-N) i <sup>nat</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-N). Do dozymetrii zostały użyte detektory diamentowe, które też w tym samym eksperymencie były używane do mapowania profilu wiązki.



Rys. 3.3.7.1. Model 3D ustawienia eksperymentu na wiązce protonowej o energii 25 MeV w Garching.



Rys. 3.3.7.2. Zdjęcie jednej z próbek z detektorami TL, przygotowanej na potrzeby eksperymentu na wiązce protonowej w Garching.

## 3.3.8. PS, CERN, Szwajcaria

Kolejną ekspozycją wysokodawkową były naświetlania na synchrotronie protonowym (PS) w CERN-ie. Celem badania uszkodzeń radiacyjnych detektorów półprzewodnikowych i elektroniki na potrzeby LHC działają w CERN-ie od 1998 roku trzy główne urządzenia do naświetlania w Przestrzeni Eksperymentalnej Hali Wschodniej (East Hall Experimental Area) Synchrotronu Protonowego (PS), rysunek 3.3.8.1 [Glaser1999, Glaser2000].

Aparatura o nazwie IRRAD1, ulokowana na linii T7 wiązki, pozwala na eksperymenty irradiacyjne przy użyciu pierwotnej wiązki protonowej o energii ok. 23 GeV, czyli 24 GeV/c<sup>1</sup>. Znajdujące się na tej samej linii urządzenie IRRAD6 pozwala natomiast prowadzić naświetlania w mieszanym polu wysokoenergetycznym złożonym z neutronów, cząstek naładowanych i promieniowania gamma. Natomiast urządzenie IRRAD2, ulokowane na końcu linii T8 wiązki, pozwala na eksperymenty w mieszanym środowisku neutronowo-gammowym, produkowanym we wnęce znajdującej się przed stoperem wiązki.



Rys. 3.3.8.1. Urządzenia do naświetlań eksperymentalnych za pomocą wiązki z Synchrotronu Protonowego (PS), znajdujące się w Hali Wschodniej w CERN [Glaser1999].

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Stopień akceleracji cząstek naładowanych jest często wyrażany też za pomocą ich pędu. Ponieważ E jest energią kinetyczną [MeV] cząstki o masie spoczynkowej M [MeV] i pędzie P [MeV/c], więc  $E = \sqrt{(P^2+M^2)} - M$ . W przypadku protonów M = 938 MeV [Sullivan1992].

#### 3.3.8a. PS-IRRAD1

W linii T7 pierwotna wiązka protonowa Synchrotronu Protonowego (PS) o energii 24 GeV/c jest kierowana do obszaru naświetlań, gdzie znajduje się zdalnie sterowany transporter urządzenia zwanego IRRAD1 (rys.3.3.8.1). Do tego obszaru protony są dostarczane cyklicznie (cykl trwa 16,8 s), w 1-3 paczkach, około 400 ms każda, z maksymalnym natężeniem wiązki  $2x10^{11}$  protonów na paczkę. Do rozpraszania wiązki celem uzyskania jednorodnej wiązki napromieniającej o powierzchni mogącej się zmieniać od 2 do 25 cm<sup>2</sup> (rys. 3.3.8.2) jest używany system dekolimująco-skanujący [Glaser1999, Glaser2006]. To pozwala otrzymywać strumienie protonów od  $8x10^{11}$  cm<sup>-2</sup>h<sup>-1</sup> do  $8x10^{13}$  cm<sup>-2</sup>h<sup>-1</sup>.



Rys. 3.3.8.1. Schemat urządzenia IRRAD1 do naświetlań eksperymentalnych na akceleratorze PS w CERN.

Transporter urządzenia IRRAD1 porusza się po szynie wewnątrz metalowej rury o długości około 15 m, co pozwala transportować próbki bezpośrednio z pokoju pomiarowego do obszaru naświetlań. Rura znajduje się w osłonie chroniącej ją przed promieniowaniem, zbudowanej z betonowych bloków, jak widać na rysunku 3.3.8.1. W obszarze naświetlań, pomiędzy pozycją transportera a znajdującym się za nim stoperem wiązki, umieszczono marmurowy absorber (20 cm), aby zmniejszyć do kilku procent udział rozpraszanych wstecznie neutronów. Monitorowanie wiązki za pomocą kamery jest używane do wyświetlania przekroju wiązki, a Komora Emisji Wtórnej (Secondary Emission Chamber) [Bernier1997] pozwala mierzyć całkowite natężenie wiązki w czasie naświetlań [Glaser2006].



Rys. 3.3.8.2. Wysokiej rozdzielczości profile wiązki protonowej uzyskane za pomocą 100 µm filmu OSL [Glaser2006], uwidaczniające niejednorodność rozkładu dawki w uzyskiwanej wiązce.

W urządzeniu IRRAD1 Synchrotronu Protonowego naświetlono 250 detektorów różnych typów (<sup>nat</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7), <sup>nat</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-7)) w zakresie dawek od 5 Gy do 1 MGy. Każda próbka z detektorami zawierała sześć warstw, po cztery detektory w każdej warstwie. Celem zminimalizowania aktywacji materiału opakowań próbek, detektory zostały umieszczone w centralnym obszarze (1 cm x 1 cm) kwadratów z tektury o powierzchni 5 cm x 5 cm (rysunki 3.3.8.3 i 3.3.8.4).



Rys. 3.3.8.3. Zdjęcie pojedynczej warstwy próbki przygotowanej do naświetlań protonami.



Rys. 3.3.8.4. Zdjęcie kilku próbek przygotowanych do naświetlań protonami.

Dozymetria tych naświetlań prowadzona była za pomocą aluminiowych folii aktywacyjnych (<sup>27</sup>Al(p,3pn)<sup>24</sup>Na, <sup>27</sup>Al(p,3p3n)<sup>22</sup>Na). Kolejne próbki detektorów TL zostały poddane naświetleniu ośmioma różnymi dawkami, podlegając działaniu wiązki protonowej o różnych fluencjach (w przedziale od 3,96x10<sup>10</sup> p/cm<sup>2</sup> do 3,57x10<sup>15</sup> p/cm<sup>2</sup>). Niepewność rozszerzona wyznaczenia fluencji protonów dla tych próbek kształtowała się na poziomie od 7,8% do 10%.

## 3.3.8b. PS-IRRAD6

Pole promieniowania w obszarze wokół stanowiska do naświetlań urządzenia IRRAD1, generowane przy hamowaniu wiązki protonów o energii 24 GeV/c na stoperze wiązki, jest również często wykorzystywane do testów. W obszarze tym, zwanym IRRAD6 (rys.3.3.8.5), uzyskuje się pole mieszane o niskiej mocy. Próbki naświetlane tam umieszczane są w pozycjach identyfikowanych za pomocą dwu współrzędnych, odległości od stopera wiązki mierzonej wzdłuż linii T7 oznaczanej jako Z i radialnej odległości od osi wiązki, oznaczanej r.



Fig 3.3.8.5. Schematyczny szkic stanowisk IRRAD na akceleratorze PS w CERN-ie, z zaznaczeniem obszaru IRRAD6 [Ravotti2007].

W przeprowadzonym eksperymencie wykorzystano dwa spośród pięciu, wydzielonych w obszarze IRRAD6, punktów pomiarowych zwróconych ku żelaznej ścianie (rys. 3.3.8.5 [Ravotti2007]). Współrzędne wydzielonych punktów pomiarowych zostały zestawione w tabeli 3.3.8.1, w zależności od wykorzystanej pozycji mamy do czynienia z naświetlaniami w polu mieszanych o zróżnicowanym udziale składowych pola.

Nazwa	r = 60	r = 90	r = 100	PMI Loc.	Mag. QF003
Z (cm)	15	15	15	130	60
r (cm)	60	90	100	80	140

Tabela 3.3.8.1. Lista parametrów pozycji do naświetlań dostępnych w urządzeniu IRRAD6.

Aby wyznaczyć skład widma promieniowania i natężenie składowych tego widma dla pozycji testowych w obszarze IRRAD6 różni autorzy przeprowadzili wiele symulacji metodami Monte Carlo [np. Leroy1998]. Wyniki tych symulacji były korelowane z pomiarami prowadzonymi za pomocą folii aktywacyjnych [Bacardit-Corrons2000]. Rysunek 3.3.8.6 pokazuje widmo promieniowania uzyskane dla pozycji Z=15 cm i r=60 cm, dla sytuacji gdy 10<sup>5</sup> protonów doszło do stopera wiązki. W tej pozycji środowisko jest zdominowane przez rozproszone neutrony i fotony o energiach w obszarze dziesiątek MeV. Przy energiach wyższych niż 100 MeV wkład od naładowanych hadronów zaczyna być także znaczący [Ravotti2007]. Na rysunku 3.3.8.7 przedstawiono porównanie strumieni neutronów wyznaczonych za pomocą symulacji metodami Monte Carlo dla pozycji naświetlań urządzenia IRRAD6 z wynikami pomiarów w tych pozycjach za pomocą diod p-i-n typu CMRP [Ravotti2007].



Rys. 3.3.8.6. Widmo promieniowania obliczone metodami Monte Carlo dla pozycji Z=15 cm, r=60 cm obszaru IRRAD6 [Ravotti2007].

Ponad 150 detektorów różnych typów (<sup>nat</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7), <sup>6</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-6), <sup>nat</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-7), <sup>6</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-

6)), w tym detektory o zwiększonej czułości na neutrony termiczne, zostało eksponowanych w urządzeniu IRRAD6 w dwu pozycjach:

P1 @ r=60, czyli r=60 cm, Z=15 cm

P2 @ Mag. QF003, czyli r= $\sim$ 1 m Z = 60 cm

W każdej z nich umieszczono po trzy próbki i kolejno je wyjmowano po ok. 1/3, 2/3 i na końcu pełnego cyklu operacyjności synchrotronu w ciągu roku (ok. siedem miesięcy). W ten sposób w każdej z testowanych pozycji naświetlono trzy próbki kolejno rosnącymi dawkami.



Rys. 3.3.8.7. Porównanie strumieni neutronów obliczonych za pomocą symulacji metodami Monte Carlo dla pozycji naświetlań urządzenia IRRAD6 z pomiarami w tych pozycjach za pomocą diod p-i-n typu CMRP [Ravotti2007].

Dozymetria tych naświetlań prowadzona była poprzez pomiar fluencji protonów za pomocą aluminiowych folii aktywacyjnych i reakcji <sup>27</sup>Al(p,3pn)<sup>24</sup>Na, <sup>27</sup>Al(p,3p3n)<sup>22</sup>Na, stowarzyszony z referencyjnymi ekspozycjami dawkomierzy alaninowych, odczytanych metodą elektronowego rezonansu paramagnetycznego, mającymi na celu powiązanie fluencji pierwotnej wiązki protonów z energią promieniowania wtórnego zaabsorbowaną w naświetlonych próbkach. Niepewność rozszerzona wartości ekspozycji w przypadku tych naświetlań wynosiła ok. 20%.

## 3.3.9. CERF, CERN, Szwajcaria

W ramach realizacji pracy, autorka przeprowadziła trzykrotną ekspozycję detektorów TL w polu promieniowania CERF (CERN-EU high-energy reference field) w CERN-ie

[Mitaroff2002]. To referencyjne pole promieniowania jest wytwarzane poprzez kierowanie wiązki hadronów o pędzie 120 GeV/c z Super Proton Synchrotronu (SPS) w CERN-ie na miedzianą tarczę o długości 50 cm, co powoduje powstanie kaskady cząstek wtórnych o szerokim widmie energetycznym. Pole to wytwarzane jest 1-2 razy do roku przez okres około tygodnia i wykorzystywane do badania odpowiedzi różnych typów detektorów i dawkomierzy na tego rodzaju mieszane promieniowanie. Jako referencyjne stanowisko kalibracyjne, traktowane są zdefiniowane pozycje położone za betonowymi osłonami, dla których to pozycji określono na drodze wieloletnich pomiarów i obliczeń, wartości mocy dawki oraz widma promieniowania. Istnieje również możliwość eksponowania detektorów bezpośrednio na miedzianej tarczy, a uzyskiwane wówczas moce dawki są znacznie wyższe niż za osłonami betonowymi. W tej konfiguracji jednak, moc dawki nie jest równie dobrze określona i ekspozycja taka nie może być traktowana jako referencyjna.

Autorka wykorzystała obie opisane powyżej możliwości ekspozycji: nisko- i wysokodawkową [Obryk2008]. Na rysunku 3.3.9.1 przedstawiono ustawienie eksperymentu w polach CT pola CERF, a na rysunku 3.3.9.2 przedstawiono rozmieszczenie badanych detektorów na tarczy miedzianej i w jej pobliżu w czasie jednego z trzech eksperymentów przeprowadzonych w polu CERF. Maksymalny poziom uzyskanych dawek sięgał stu kilkudziesięciu grejów. Przetestowany został również wpływ moderacji prędkich neutronów przy użyciu cylindrów z PMMA o średnicy 25 cm (rys. 3.3.9.3) na efektywność detekcji neutronów za pomocą detektorów TL [Obryk2008].



Rys. 3.3.9.1. Rozmieszczenie detektorów TL na pozycjach CT pola eksperymentalnego CERF w czasie eksperymentu.



Rys. 3.3.9.2. Rozmieszczenie detektorów na miedzianej tarczy wiązki SPS w CERN-ie w czasie jednego z eksperymentów w polu eksperymentalnym CERF.



Rys. 3.3.9.3. Układ eksperymentalny naświetlań detektorów TL na pozycjach CS pola eksperymentalnego CERF z zastosowaniem cylindrycznych moderatorów z PMMA o średnicy 25 cm.

#### 3.3.10. Lublana, Słowenia

Eksponowano 400 detektorów różnych typów na bazie LiF wiązką neutronów z reaktora TRIGA Mark II znajdującego się w Centrum Badań Reaktorowych Instytutu Josefa Stefana (JSI) w Lublanie, Słowenia. W reaktorze tym ekspozycje są dokonywane poprzez umieszczanie próbek w rdzeniu reaktora poprzez dwa kanały, które zajmują miejsca prętów paliwowych i wchodzą do rdzenia reaktora od góry. Strumień neutronów dostarczany do próbek jest liniowo proporcjonalny do mocy reaktora, która może się zmieniać w zakresie 250 W do 250 kW [Ravnik2003]. Pomiar fluencji prowadzony był przez zespół reaktora TRIGA Mark II z JSI za pomocą folii ze złota, fluencje dla poszczególnych próbek wynosiły od 3x10<sup>11</sup> n/cm<sup>2</sup> do 3x10<sup>15</sup> n/cm<sup>2</sup>.

W eksperymencie tym ekspozycji na neutrony termiczne i epitermiczne poddano sześć typów detektorów na bazie fluorku litu (LiF:Mg,Ti (MTS-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-7), <sup>6</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-6), oraz LiF:Mg,Cu,P (MCP-N), <sup>7</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7), <sup>6</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-6)). Izotop <sup>6</sup>Li, wchodzący w skład litu naturalnego z abundancją 7,5%, ma wysoki przekrój czynny na reakcję <sup>6</sup>Li(n, $\alpha$ )<sup>3</sup>H (rozdział 2.3.3.5, rys. 2.3.3.5.1).

Poekspozycyjna fotografia próbek poddanych naświetlaniom neutronami termicznymi i epitermicznymi w reaktorze TRIGA Mark II, uwidoczniająca przegrzanie próbek poddanych najwyższym strumieniom neutronów, została przedstawiona na rys. 3.3.10.1. Niewątpliwie przegrzaniu w tych kilku próbkach uległy detektory wzbogacone w <sup>6</sup>Li, bowiem wokół nich folia opakowań została nadtopiona.



Rys. 3.3.10.1. Poekspozycyjna fotografia próbek poddanych naświetlaniom neutronami termicznymi i epitermicznymi w reaktorze TRIGA Mark II, uwidoczniająca przegrzanie próbek poddanych najwyższym fluencjom neutronów.

# 4. Krzywe świecenia i ich analiza

W rozdziale tym przedstawiono wyniki odczytu krzywych świecenia detektorów na bazie LiF, w tym przede wszystkim detektorów MCP-N, eksponowanych na różne rodzaje promieniowania w zakresie dawek od 1 Gy do 1 MGy i odczytywanych do temperatury 600°C. Autorka tej pracy po raz pierwszy zaobserwowała i opisała wysokotemperaturową termoluminescencję LiF:Mg,Cu,P eksponowanego na dawki promienowania do 1 MGy. W rozdziale tym szczególną uwagę poświęcono analizie cech zjawiska wysokotemperaturowej wysokodawkowej emisji detektorów LiF:Mg,Cu,P pod kątem jego zastosowania w dozymetrii.

### 4.1. Krzywe świecenia w funkcji dawki dla różnych rodzajów i jakości promieniowania

W tym rozdziale przedstawiono krzywe świecenia detektorów po ekspozycji na dawki w zakresie od 1 Gy do 1 MGy oraz przeprowadzono analizę tych krzywych, częściowo z wykorzystaniem dekonwolucji krzywych temperaturowych. Przeanalizowano warunki prowadzące do wystąpienia w detektorach LiF:Mg,Cu,P emisji wysokotemperaturowej dla różnych jakości promieniowania i różnych zakresów dawek.

## 4.1.1. Promieniowanie gamma

W tabeli 4.1.1.1 przedstawiono zestawienie parametrów promieniowania i zakresy dawek dla eksperymentów gamma przeprowadzonych z wykorzystaniem źródła <sup>60</sup>Co (patrz rozdziały 3.3.1, 3.3.2 i 3.3.4).

L.p.	Eksperyment	Źródło i energia promieniowania gamma	Zakres dawek
1.	CO/IFJ PAN Kraków i KAERI	<sup>60</sup> Co, średnia energia 1,25 MeV	1 Gy – 10 kGy
2.	CEA Saclay	<sup>60</sup> Co, średnia energia 1,25 MeV	0,75 kGy – 38,6 kGy
3.	KAERI	<sup>60</sup> Co, średnia energia 1,25 MeV	0,5 kGy – 500 kGy

Tabela 4.1.1.1. Zestawienie parametrów eksperymentów z promieniowaniem gamma <sup>60</sup>Co.

Krzywe świecenia detektorów TL na bazie fluorku litu, MTS, MTT i MCP, po naświetleniu dawkami promieniowania gamma 1 Gy, 1 kGy i 5 kGy zostały przedstawione na rys. 4.2.1.1.1 (eksperyment 1 z tabeli 4.2.1.1, [Bilski(Obryk)2007]). Dla detektorów MCP zaobserwowano poszerzenie się głównie części wysokotemperaturowej krzywej świecenia. Dla dawek

przekraczających 1 kGy, zaobserwowano wzrost intensywności pików wysokotemperaturowych, podobnie jak dla detektorów MTS i MTT, z tym że w tym samym obszarze dawek zaobserwowano jednocześnie malenie głównego piku dozymetrycznego dla MCP, czego nie zaobserwowano ani dla detektorów MTS, ani MTT.



Rys. 4.1.1.1. Krzywe świecenia testowanych detektorów TL dla trzech wybranych poziomów dawek: 1 Gy, 1 kGy i 5 kGy, znormalizowane do maksymalnej wysokości sygnału [Bilski(Obryk)2007].

Wyniki eksperymentu 2, przeprowadzonego w CEA-Saclay na źródle <sup>60</sup>Co, w postaci zestawienia krzywych świecenia detektorów MCP-N dla kolejnych wartości ekspozycji promieniowaniem gamma (zakres dawek 750 Gy – 38,6 kGy), przedstawiono na rysunku 4.1.1.2. Rysunek ten ilustruje zmiany kształtu krzywych świecenia detektorów termoluminescencyjnych LiF:Mg,Cu,P w funkcji dawki promieniowania. Widać, że powyżej kilku kGy w krzywych świecenia pojawia się wyraźny trend zaniku głównego piku dozymetrycznego, przy rosnących pikach wysokotemperaturowych.



Rys. 4.1.1.2. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po ekspozycji promieniowaniem gamma (<sup>60</sup>Co) w CEA Saclay dla zakresu dawek 0,75 kGy-38,6 kGy.

Wyniki otrzymane w eksperymencie 3, z użyciem promieniowania gamma ze źródła kobaltowego w KAERI, w zakresie dawek od 0,5 kGy do 500 kGy i przy dużej gęstości obsadzenia tego zakresu (9 punktów dawkowych, 24 detektory MCP-N na punkt, patrz rozdział 3.3.4), zostały przedstawione kolejno na rysunkach 4.1.1.3, 4.1.1.4 i 4.1.1.5. Wyniki te miały zasadnicze znaczenie dla osiągnięcia celów pracy [Bilski,Obryk2008; Obryk2009].

Analogicznie jak dla eksperymentu w CEA Saclay, dla dawek do 5 kGy widocznym efektem jest narastanie emisji w obszarze wysokotemperaturowym krzywych świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P (rys. 4.1.1.3). Dla dawek rzędu kilku kilogrejów ma ono charakter wznoszenia się wysokotemperaturowego zbocza głównego piku krzywej świecenia występującego w ok. 230°C (pik 4).



Rys. 4.1.1.3. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach <sup>60</sup>Co dla zakresu dawek 0,5 kGy-5 kGy (krzywe dla 0,5;1;5 kGy pochodzą z naświetlań w KAERI, a krzywe dla 2 i 3 kGy z naświetlań w IFJ PAN), przy czym wysokość piku została znormalizowana do jedności. Strzałka wskazuje rosnące dawki [Bilski,Obryk2008; Obryk2009].

W zakresie dawek 10-50 kGy pik główny krzywej świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P ulega silnej redukcji, a dla dawki 50 kGy jest on już praktycznie nieobserwowalny. Przy dawce około 50 kGy zaobserwowano pojawienie się nowego piku, nazwanego przez autorkę pikiem 'B', z maksimum w temperaturze około 400°C.



Rys. 4.1.1.4. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach <sup>60</sup>Co dla zakresu dawek 5 kGy-50 kGy (ekspozycja w KAERI) [Bilski,Obryk2008; Obryk2009].

Dla dawek przekraczających 50 kGy (rys. 4.1.1.5) natężenie piku 'B' rośnie wraz ze wzrostem dawki. Jednocześnie autorka zaobserwowała przesuwanie się położenia piku 'B' w kierunku wyższych temperatur wraz z rosnącą dawką. To zaskakujące zjawisko zostało omówione w rozdziale 4.2.3.



Rys. 4.1.1.5. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach <sup>60</sup>Co dla zakresu dawek 50 kGy-500 kGy, z wyraźnie zaznaczonym nowo odkrytym pikiem 'B' (ekspozycja w KAERI) [Bilski,Obryk2008; Obryk2009].

## 4.1.2. Elektrony

Ekspozycje detektorów MCP-N w zakresie dawek 5 kGy – 1000 kGy przeprowadzono w Instytucie Chemii i Techniki Jądrowej w Warszawie, z wykorzystaniem akceleratora elektronów służącego do sterylizacji, dającego wiązkę elektronów o energii 10 MeV (szczegóły w rozdziale 3.3.6).

Na rys. 4.1.2.1 zostały przedstawione przykłady krzywych świecenia zmierzonych dla różnych dawek od elektronów. Wyniki te [Bilski,Obryk2010] są spójne z rezultatami otrzymanymi dla promieniowania gamma ze źródła kobaltowego. Zaobserwowano pojawienie się piku 'B' dla dawek przewyższających 50 kGy (rys. 4.1.2.1a). Eksperyment pokazał, że tak jak dla fotonów, dla elektronów również występują trzy zakresy charakterystycznego zachowania krzywych świecenia (rys. 4.1.2.2) [Obryk2009]. Zaobserwowano natomiast zmniejszanie się amplitudy piku 'B' powyżej dawki 200 kGy (rys. 4.1.2.1b), gdy tymczasem dla promieniowania gamma obserwowany był jego wzrost aż do 500 kGy. Ze względu na trudności w powtórzeniu obu eksperymentów przyczyna tej rozbieżności nie została dotychczas wyjaśniona.



Rys. 4.1.2.1. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach elektronami o energii 10 MeV dla zakresu dawek 5 kGy-1000 kGy, z wyraźnie wyodrębnionym nowo odkrytym pikiem 'B' dla dawek powyżej 50 kGy.



Rys. 4.1.2.2. Przykładowe krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P, po naświetlaniach elektronami o energii 10 MeV, o wyglądzie charakterystycznym dla każdego z trzech zakresów dawek [Obryk2009].

Wzrost pików wysokotemperaturowych poniżej 400°C wraz z rosnącą dawką został zaobserwowany również dla detektorów LiF:Mg,Ti poddanych naświetlaniom elektronami (rys. 4.1.2.3). Jednakże pik 'B', pojawiający się w krzywych świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P już przy dawkach około 50 kGy, nie został zaobserwowany w krzywych świecenia detektorów LiF:Mg,Ti, jedynie jego resztkowa postać wydaje się być obecna dla dawek powyżej 1 kGy (rys. 4.1.2.3). Pozycja tego resztkowego piku przesuwa się również z dawką ku wyższym temperaturom, ale jego intensywność jest zaniedbywalna w porównaniu z intensywnością piku 'B', zaobserwowanego dla detektorów MCP. Na rysunku 4.1.2.4 przedstawione zostało porównanie trendów jakim podlega amplituda wysokotemperaturowego piku 'B' dla obu rodzajów detektorów w funkcji dawki.



Rys. 4.1.2.3. Przykładowe krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P (dla różnych grup produkcyjnych: MCP-N(P1), MCP-N(P2) i MCP-7), po naświetlaniach elektronami o energii 10 MeV, dawką 1000 kGy, (widać wyraźnie wyodrębniony nowo odkryty pik 'B' dla detektorów LiF:Mg,Cu,P, którego jedynie ślad jest widoczny dla detektorów LiF:Mg,Ti), odniesione dla porównania do krzywych po naświetlaniach dawką 5 kGy [Bilski,Obryk2010].



Rys. 4.1.2.4. Amplituda piku 'B' dla detektorów MCP-N i MTS-N naświetlonych 10 MeV elektronami w funkcji dawki. Krzywe reprezentują dopasowanie empiryczne, które ma pokazać trendy krzywych [Bilski,Obryk2010].

### 4.1.3. Protony

Odpowiedź detektorów termoluminescencyjnych zależy gęstości jonizacji od promieniowania. Celem tej części pracy było zbadanie występowania wysokotemperaturowego piku 'Β' W krzywych świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach wysokodawkowych protonami o początkowej energii 25 MeV. Zdolność hamowania 25 MeV protonów we fluorku litu wynosi 4,4 keV/µm [SRIM2010], czyli jest o rząd wielkości wyższa niż w eksperymentach gammowych. W tabeli 4.1.3.1 zestawiono parametry przeprowadzonych eksperymentów protonowych.

Tabela 4.1.3.1. Zestawienie parametrów eksperymentów protonowych

L.p.	Eksperyment	Energia wiązki protonów	Zakres dawek
1.	Garching	25 MeV	~1 kGy; ~1 MGy
2.	PS w CERN	24 GeV/c	0,01 kGy – 1 MGy

Wyniki eksperymentu przeprowadzonego w Garching (patrz rozdział 3.3.7), na wiązce protonów o energii 25 MeV, potwierdziły występowanie wysokotemperaturowego piku 'B' dla detektorów MCP-N. Wiązka protonów o średnicy 2 mm eksponowała tylko pojedynczy detektor każdej matrycy, pozostałe detektory wykazały jedynie względnie niewielkie podniesienie tła. Krzywa świecenia przedstawiona na rys. 4.1.3.1 wykazuje obecność charakterystycznego wysokotemperaturowego piku 'B' [Obryk2009].

Jak można zauważyć analizując kształt krzywej świecenia dla dawki około 1 MGy (rys.4.1.3.1), mimo występowania bardzo intensywnego wysokotemperaturowego piku 'B', również w obszarze niskich temperatur świecenie jest dość intensywne, inaczej niż było to

obserwowane w poprzednich wysokodawkowych ekspozycjach. Wynika to z faktu, że ze względu na bardzo małą średnicę wiązki protonów (2 mm) w stosunku do średnicy detektora TL (4,5 mm), detektor został naświetlony nierównomiernie i obszary położone na brzegu wiązki otrzymały niższą dawkę od położonych w jej centrum. Dlatego na krzywą świecenia składają się krzywe z obszarów o zróżnicowanej dawce. Również rozkład głębokościowy dawki w detektorze TL o grubości 0.9 mm nie jest równomierny.



Rys. 4.1.3.1. Przykładowe krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P naświetlonych wiązką protonów o energii 25 MeV w Garching [Obryk2009].

W eksperymencie na wiązce protonów o energii 24 GeV/c (PS w CERN, patrz rozdział 3.3.8 i 3.3.8a), kolejne próbki z detektorami TL zostały poddane naświetlaniom wiązką protonów o fluencjach w przedziale od 3,96x10<sup>10</sup> p/cm<sup>2</sup> do 3,57x10<sup>15</sup> p/cm<sup>2</sup>. Przyjmując, że protony o energii 24 GeV/c deponują w praktycznie każdym materiale energię ok. 2 MeVcm<sup>2</sup>g<sup>-1</sup> [CERNIrradiationWebsite; NISTdata], można wyliczyć, że detektory z kolejnych próbek 0,02 kGy±10%, zaabsorbowały następujące dawki: 0,01 kGy±10%, 0,06 kGy±10%, 0,75 kGy±10%, 10 kGy±7.7%, 120 kGy±7.6%, 470 kGy±7.8%, 1000 kGy±8%. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P (MCP-N) uzyskane dla kolejnych dawek przestawione są na rys. 4.1.3.2. Autorka zaobserwowała wzrost amplitudy wysokotemperaturowego piku 'B', aż do dawki 1000 kGy, jak również przesunięcie położenia tego piku z rosnącą dawką w stronę wyższych temperatur (omówione w rozdziale 4.3), co jest zgodne z wynikami uzyskanymi poprzednio [Obryk2010].

Ewolucja kształtu krzywych świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach wysokoenergetycznymi protonami jest konsystentna z poprzednimi wynikami dla naświetlań gamma i elektronowych, oraz dla protonów o energii 25 MeV. Tutaj również dla dawek powyżej 1 kGy rozpoczyna się zanik głównego piku dozymetrycznego, a zaczynają narastać piki wysokotemperaturowego ogona krzywej (poniżej 400°C). Następnie w przedziale dawek

pomiędzy 10 kGy a 120 kGy pojawia się, przy temperaturach około 400°C, nowy, dobrze odseparowany pik (pik 'B'), który jest dominującym pikiem krzywej świecenia. Pozycja piku 'B' przesuwa się w stronę wyższych temperatur wraz ze wzrostem dawki, tak jak w poprzednich eksperymentach.



Rys. 4.1.3.2. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach protonami o energii 24 GeV/c dla zakresu dawek 0,01 kGy - 1000 kGy [Obryk2010].

Wszystkie krzywe uzyskane detektorami MCP-N dla obszaru wysokodawkowego zostały zaprezentowane na rys. 4.1.3.3 w odniesieniu do krzywej dla dawki 0,75 kGy. Widoczny rozrzut pomiędzy nimi wynika głównie z niejednorodności wiązki protonów prowadzących do rozrzutu dawek w poszczególnych detektorach (patrz rozdział 3.3.8a, rys. 3.3.8.2) [Ravotti2007]. Ta niejednorodność jest również przyczyną wyraźnej różnicy pomiędzy krzywymi uzyskanymi dla detektorów z prawej i lewej strony próbek, identycznie dla obu warstw w próbkach, zawierających detektory MCP-N (rys. 4.1.3.4 i 4.1.3.5).



Rys. 4.1.3.3. Krzywe świecenia zestawu detektorów LiF:Mg,Cu,P naświetlonych wiązką protonów o energii 24 GeV/c w zakresie dawek 10 kGy – 1000 kGy w odniesieniu do krzywej dla dawki 0,75 kGy.



Rys. 4.1.3.4. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P z warstwy 1, naświetlonych wiązką protonów o energii 24 GeV/c w zakresie dawek 0,01 kGy – 1000 kGy.



Rys. 4.1.3.5. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P z warstwy 2 naświetlonych wiązką protonów o energii 24 GeV/c w zakresie dawek 0,01 kGy – 1000 kGy.

Krzywe świecenia uzyskane dla znajdujących się w naświetlonych próbkach detektorów MCP-7 przedstawiono na rysunkach 4.1.3.6 – 4.1.3.8. Nie zaobserwowano różnicy w kształcie krzywych świecenia dla detektorów MCP-N i MCP-7, widoczny jest jednak udział neutronów w dawce, jako że sygnał z detektorów z litu naturalnego (rysunki 4.2.1.3.3 - 5) jest większy niż ten z detektorów wzbogaconych w <sup>7</sup>Li (rysunki 4.1.3.6 - 8).



Rys. 4.1.3.6. Krzywe świecenia detektorów <sup>7</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7) z pozycji 1 próbek, po naświetlaniach protonami o energii 24 GeV/c dla zakresu dawek 0,01 kGy-1000 kGy.



Rys. 4.1.3.7. Krzywe świecenia detektorów <sup>7</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7) z pozycji 2 próbek, po naświetlaniach protonami o energii 24 GeV/c dla zakresu dawek 0,01 kGy-1000 kGy.



Rys. 4.1.3.8. Krzywe świecenia zestawu detektorów <sup>7</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7) po naświetlaniach protonami o energii 24 GeV/c w zakresie dawek 10 kGy – 1000 kGy, w odniesieniu do krzywej dla dawki 0,75 kGy.

Wzrost pików wysokotemperaturowych poniżej 400°C wraz z rosnącą dawką został przez autorkę zaobserwowany również dla detektorów LiF:Mg,Ti poddanych naświetlaniom wiązką protonową o energii 24 GeV/c (rysunki 4.2.1.3.9 i 4.2.1.3.10). Jednakże intensywny pik 'B' nie został zaobserwowany w krzywej świecenia tych detektorów, a jedynie jego resztkowa postać wydaje się być obecna już dla dawek powyżej 1 kGy, podobnie jak w przypadku naświetlań elektronowych. Pozycja tego resztkowego piku również przesuwa się z dawką (rys. 4.2.1.3.11), ale jego intensywność jest znikomo mała w porównaniu z intensywnością piku 'B' dla detektorów MCP (rys. 4.1.3.12), co uniemożliwia użycie go do celów dozymetrii wysokodawkowej.



Rys. 4.1.3.9. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Ti (MTS-N) po naświetlaniach protonami o energii 24 GeV/c dla zakresu dawek 0,01 kGy - 1000 kGy.



Rys. 4.1.3.10. Krzywe świecenia detektorów <sup>7</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-7) po naświetlaniach protonami o energii 24 GeV/c dla zakresu dawek 0,01 kGy - 1000 kGy.



Rys. 4.1.3.11. Wybrane krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Ti (MTS-N) naświetlonych wiązką protonów o energii 24 GeV/c w zakresie dawek 10 kGy – 1000 kGy w odniesieniu do krzywej dla dawki 0,75 kGy. Resztkowa postać piku 'B' widoczna w powiększeniu w prawym dolnym rogu [Obryk2010].



Rys. 4.1.3.12. Porównanie krzywych świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P (MCP-N/7) i LiF:Mg,Ti (MTS-N/7) naświetlonych dawką 1000 kGy za pomocą wiązki protonów o energii 24 GeV/c. Widoczna diametralnie różna postać piku wysokotemperaturowego dla detektorów MCP i MTS (resztkowa jego postać dla detektorów MTS widoczna w powiększeniu w prawym dolnym rogu) [Obryk2010].

Charakterystyki krzywych świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P (MCP) i LiF:Mg,Ti (MTS) okazały się być diametralnie różne w zakresie dawek wysokich i bardzo wysokich. Jednakże dla obu typów detektorów widoczny jest udział w dawce neutronów, albowiem sygnał dla detektorów z naturalną abundancją izotopów litu jest wyższy niż dla tych z litu wzbogaconego w <sup>7</sup>Li.

#### 4.1.4. Neutrony termiczne i epitermiczne

Zbadano odpowiedź detektorów LiF:Mg,Cu,P i LiF:Mg,Ti na ekspozycję wiązką neutronową na stanowisku w reaktorze TRIGA Mark-II (patrz rozdział 3.3.10) do sygnału TL odpowiadającego dawce promieniowania gamma 1 MGy. Obecność wysokotemperaturowego piku 'B' została stwierdzona dla różnych typów detektorów LiF:Mg,Cu,P, tym samym potwierdzając poprzednio odkryte cechy tych detektorów dla innych jakości promieniowania (rys. 4.1.4.1 i 4.1.4.2).



Rys. 4.1.4.1. Krzywe świecenia detektorów MCP-N dla różnych wartości fluencji neutronów z reaktora TRIGA Mark II z wyraźnie wyodrębnionym pikiem 'B' dla sygnału wysokodawkowego.



Rys. 4.1.4.2. Krzywe świecenia detektorów MCP-6 dla różnych wartości fluencji neutronów z reaktora TRIGA Mark II z wyraźnie wyodrębnionym pikiem 'B' dla sygnału wysokodawkowego.

Stwierdzono, na podstawie pomiaru dla detektorów z <sup>7</sup>Li, wyraźny udział dawki od fotonów w tej ekspozycji. Detektory wzbogacone w <sup>6</sup>Li, znajdujące się w próbkach poddanych wysokim fluencjom neutronów uległy przegrzaniu, folia opakowań została nadtopiona (rys. 3.3.10.1), nastąpiła częściowa anilacja detektorów i zmniejszenie ich sygnału. Fakt ten uniemożliwił ilościową analizę uzyskanych wyników.

#### 4.1.5. Wysokoenergetyczne pola mieszane

#### • Pomiary dawek wokół IRRAD6

W ramach pracy wykonano ekspozycję detektorów TL w wysokoenergetycznym mieszanym polu promieniowania na urządzeniu IRRAD6 cernowskiego PS. Detektory były eksponowane przez cały okres operacyjności PS w ciągu roku (siedem miesięcy), pomimo tego uzyskane dawki nie przekroczyły poziomu kilku kilogrejów.

Ocena dawki pochłoniętej w detektorach LiF w miejscu ich ekspozycji, pochodzącej od cząstek bezpośrednio jonizujących, została przeprowadzona na podstawie wskazań Komory Emisji Wtórnej, kalibrowanej do dawki pochłoniętej w wodzie na podstawie wskazań detektora alaninowego [Markus Fuerstner, informacja własna]. Pomiary te pozwoliły określić (z dokładnością 20%: <u>https://irradiation.web.cern.ch/irradiation/Dosimeter/Set\_P1\_2007.htm</u>, pozycja 891) dawki uzyskane dla obu pozycji IRRAD6, w których umieszczono próbki TL (P1 @ r=60cm, Z=15cm; P2 @ Mag. QF003, r=~1m Z = 60cm), wyniki zostały przedstawione tabeli 4.1.5.1. Tak uzyskane dawki nie biorą pod uwagę energii przekazanej detektorom LiF w wyniku reakcji neutronów z <sup>6</sup>Li.

Czasy ekspozycji	Komora Emisji Wtórnej (SEC-	Pozycja P1	Pozycja P2	
լոյ	[imp]	Dawka [kGy] ± 20%		
T1 = 1871	7,11x10 <sup>9</sup>	2,4	0,9	
T2 = 3475,5	9,63x10 <sup>9</sup>	3,3	1,2	
T3 = 4773	$1,19 \times 10^{10}$	4,1	1,5	

Tabela 4.1.5.1. Dawki dla kolejnych czasów ekspozycji T1, T2,T3 w pozycjach P1 i P2 IRRAD6.

Przykładowe krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P z różnym składem izotopowym Li, uzyskane w wyniku naświetlań w mieszanym polu IRRAD6, zostały przedstawione na rysunkach 4.1.5.1.A-C. Dla dawek powyżej 1 kGy zaobserwowano nasycenie amplitudy głównego piku dozymetrycznego i narastanie pików wysokotemperaturowych (poniżej 400°C). Różnice kształtu krzywych świecenia dla detektorów MCP-N, MCP-7 i MCP-6 potwierdzają znaczący udział w dawce depozycji energii od neutronów termicznych i epitermicznych (rys. 4.1.5.2). Krzywe dla detektorów MCP-7 wykazują minimalne podniesienie pików wysokotemperaturowego ogona, podczas gdy krzywe dla detektorów MCP-N mają te piki wyraźnie zaznaczone, a krzywe uzyskane dla detektorów MCP-6 wykazują już cechy krzywych dla dawek wyższych niż oszacowane za pomocą kalibracji detektorem alaninowym (w krzywej dla MCP-6 na rys. 4.1.5.2 pik 'B' wydaje się wyraźnie zaznaczać swoją obecność).



Rys. 4.1.5.1. Wybrane krzywe świecenia detektorów: A) <sup>7</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-7); B) LiF:Mg,Cu,P (MCP-N); C) <sup>6</sup>LiF:Mg,Cu,P (MCP-6), naświetlonych wysokoenergetycznym promieniowaniem mieszanym w zakresie szacowanych dawek ok. 0,9 kGy – 4,1 kGy, gdzie P1, P2 – pozycje naświetlań, T1, T2, T3 – czasy naświetlań.



Rys. 4.1.5.1. Krzywe świecenia detektorów MCP-7, MCP-N i MCP-6, naświetlonych najwyższą dawką (czas T3) w wysokoenergetycznym polu mieszanym IRRAD6 w pozycji P1.

Wzrost pików wysokotemperaturowych poniżej 400°C wraz z rosnącą dawką został przez autorkę zaobserwowany również dla detektorów LiF:Mg,Ti poddanych naświetlaniom w polu mieszanym (rysunki 4.1.5.3.A-C). Tutaj również jest wyraźnie zaznaczony udział w dawce depozycji energii od neutronów termicznych i epitermicznych (rys. 4.1.5.4). Dodatkowo dla krzywych uzyskanych dla detektorów MTS-N i MTS-6 (dla których sygnał od neutronów termicznych i epitermicznych i epitermicznych sygnał od neutronów termicznych i epitermicznych spowodował, że dawka pochłonięta wyraźnie przekroczyła 1 kGy), zaznaczyła swoją obecność resztkowa postać piku 'B', zaobserwowana wcześniej dla naświetlań elektronami i protonami.




C)

Rys. 4.1.5.3. Wybrane krzywe świecenia detektorów: A) <sup>7</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-7); B) LiF:Mg,Ti (MTS-N); C) <sup>6</sup>LiF:Mg,Ti (MTS-6), naświetlonych wysokoenergetycznym promieniowaniem mieszanym w zakresie szacowanych dawek ok. 0,9 kGy - 4,1 kGy, gdzie P1, P2 - pozycje naświetlań, T1, T2, T3 - czasy naświetlań.



Rys. 4.1.5.4. Krzywe świecenia detektorów MTS-7, MTS-N i MTS-6, naświetlonych najwyższą dawką (czas T3) w wysokoenergetycznym polu mieszanym IRRAD6 w pozycji P1.

#### 4.2. Przesunięcie położenia piku wysokotemperaturowego 'B'

Na rys. 4.2.1 przedstawiono pozycję maksimum piku 'B' na osi temperatur w funkcji dawki dla naświetlań fotonami i elektronami. Zaobserwowano, że zarówno dla fotonów w zakresie dawek od ok. 50 kGy do 500 kGy (najwyższa ekspozycja), jak i dla elektronów o energii 10 MeV w zakresie dawek od ok. 50 kGy do 1000 kGy temperatura maksimum piku 'B' rośnie wraz z dawką. Różnica pozycji tego piku dla dawek 50 kGy i 500 kGy dla fotonów wynosi 67,8°C±6,8°C, natomiast dla elektronów w tym samym zakresie dawek różnica ta wynosi 46,8°C ±5,1°C. W przypadku elektronów różnica pozycji piku 'B' dla dawek 50 kGy i 1000 kGy (najwyższa ekspozycja) wynosi 54,2°C±4,3°C. Choć efekt występuje w obu przypadkach, to ilościowo obie zależności różnią się znacznie.



Rys. 4.2.1. Pozycja maksimum piku wysokotemperaturowego 'B' jako funkcja dawki dla detektorów LiF:Mg,Cu,P napromienionych <sup>60</sup>Co elektronami o energii 10 MeV (dla dawek poniżej ok. 50 kGy pik wysokotemperaturowy nie wyodrębniał się z krzywej świecenia).

Również w przypadku ekspozycji protonami położenia maksimum piku 'B' nie pokrywają się z położeniami tego piku dla ekspozycji elektronami (rys. 4.2.2). Nieznaczne różnice występują również w położeniu tego piku dla różnych typów detektorów (MCP-N, MCP-7) poddanych ekspozycji protonami.

Wydaje się, że różnice pozycji maksimum piku 'B' na osi temperatur w funkcji dawki nie mogą być spowodowane różnicą gęstości jonizacji promieniowania (LET) dla elektronów i protonów, lecz raczej niewystarczającą powtarzalnością wygrzewania detektorów w dostępnym modyfikowanym czytniku TL RA-94, w którym podwyższono górną granicę grzania z 400°C do 600°C.



Rys. 4.2.2. Porównanie zależności położenia maksimum piku wysokotemperaturowego 'B' od dawki dla różnych typów detektorów LiF:Mg,Cu,P naświetlonych protonami o energii 24 GeV/c i elektronami o energii 10 MeV.

Dotychczas w badaniach dotyczących termoluminescencji nie było doniesień o występowaniu tego rodzaju zjawiska w LiF i innych materiałach termoluminescencyjnych. Takiego zachowania piku termoluminescencyjnego nie da się również wytłumaczyć na podstawie istniejących modeli zjawiska termoluminescencji. Pozycja pików kinetyki pierwszego rzędu nie powinna zależeć od dawki, natomiast dla kinetyki drugiego rzędu i nawet bardziej generalnie dla modelu jednopułapkowego, pik powinien się przesuwać z dawką, ale w stronę niższych temperatur [Bos2007]. Wyjaśnienie podstaw fizycznych tego zjawiska będzie przedmiotem przyszłych badań, nie jest ono jednak przedmiotem tej pracy.

Zaobserwowany efekt przesuwania się położenia maksimum wysokotemperaturowego piku 'B' wraz z dawką w stronę wyższych temperatur, mógłby oferować możliwość wykorzystania tego zjawiska do pomiaru dawki. Niestety efekt ten okazał się być czuły na czynniki aparaturowe, takie jak precyzja dostępnych czytników TL poza normalnie stosowanym zakresem temperatur.

### 4.3. Dekonwolucja krzywych świecenia

Kształt i skład krzywej świecenia, zmierzone w procesie wygrzewania detektora TL, zależą w głównej mierze od typu detektora TL, jego historii oraz sposobu przygotowania do pomiaru (anilacji), dawki, rodzaju i energii promieniowania oraz metody odczytu (patrz rozdział 2.3). Dekonwolucję krzywych świecenia TL stosuje się m.in. do wyseparowania pików od tła nieradiacyjnego dla obniżenia najmniejszej mierzalnej dawki. Celem tej części pracy było uzyskanie systematycznych danych na temat zmienności parametrów pików składowych krzywej temperaturowej w funkcji dawki, głównie dla detektorów MCP-N, napromienionych w zakresie dawek od 1 Gy do 1 MGy w różnych polach promieniowania i odczytanych wg procedury opisanej w rozdziale 3.2, z prędkością grzania 2°C/s.

Autorka przeprowadziła ekspozycję i odczyt detektorów MCP-N, uzyskując zestaw krzywych temperaturowych dla różnych dawek oraz modalności promieniowania. Dekonwolucję tych krzywych temperaturowych na składowe piki, według modelu Randalla – Wilkinsa kinetyki pierwszego rzędu, przeprowadzili Paweł Bilski i Monika Puchalska z IFJ PAN programem GlowFit [Puchalska2006] oraz George Kitis programem GCD wraz z kodem do minimalizacji MINUIT [MINUIT]. Wyniki tych analiz zostały opublikowane w pracach [Bilski(Obryk)2007; Bilski,Obryk2008], a wyniki uzyskane przez Kitisa we współpracy z autorką są przygotowywane do publikacji [Kitis,Obryk2009].

Przykładowy wynik dekonwolucji krzywej świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P, wykonanej przy pomocy programu GlowFit [Puchalska2006] dla dawki 5 kGy od promieniowania gamma ze źródła <sup>60</sup>Co, z zastosowaniem modelu kinetyki pierwszego rzędu jest przedstawiony na rys. 4.3.1 [Bilski,Obryk2008]. Krzywą temperaturową rozłożono na 8 pików, z czego piki o numerach 1 i 2 nie są obecne ze względu na zastosowanie anilacji poekspozycyjnej, eliminującej te piki z krzywych świecenia.



Rys.4.3.1. Krzywa świecenia LiF:Mg,Cu,P po ekspozycji dawką 5 kGy rozłożona na poszczególne piki za pomocą programu GlowFit [Bilski,Obryk2008].

Rysunek 4.3.2 przedstawia uzyskaną dzięki dekonwolucji krzywych świecenia charakterystykę dawkową detektorów MCP-N (powierzchnię piku w funkcji dawki) dla pików 4-7, w zakresie dawek 1 Gy–10 kGy [Bilski(Obryk)2007]. Pik 4 (główny) nasyca się dla dawki około 1 kGy, a dla wyższych dawek ulega stopniowemu obniżeniu. Pojawiają się natomiast piki o maksimum w wyższych temperaturach, wysycające się dla dawek rzędu 5-10 kGy.



Rys. 4.3.2. Zależność powierzchni poszczególnych pików LiF:Mg,Cu,P od dawki. Linie kropkowane wskazują trend liniowy [Bilski(Obryk)2007].

Wynik dekonwolucji krzywych świecenia dla detektorów MTS i MTT, po ich ekspozycji na dawkę 5 kGy od promieniowania gamma źródła <sup>60</sup>Co, został przedstawiony na rys. 4.3.3 [Bilski(Obryk)2007]. Uzyskane pojedyncze piki składowe zostały ponumerowane zgodnie z przyjętą konwencją, według której pik 5a dla LiF:Mg,Ti, znajduje się po stronie wysokotemperaturowej piku głównego 5 dla tych detektorów. W wyniku dekonwolucji otrzymano 9 pojedynczych pików składowych dla detektorów MTS i MTT, w porównaniu z 6-cioma pikami otrzymanymi wcześniej dla detektorów MCP. Piki niskotemperaturowe 1 i 2 zostały również w tym przypadku usunięte przez zastosowaną anilację poekspozycyjną.

Wykresy 4.3.4 i 4.3.5 prezentują charakterystykę dawkową detektorów MTS i MTT (intensywność TL w funkcji dawki) dla powierzchni pików 4 – 9, w zakresie dawek 1 Gy – 10 kGy, uzyskaną dzięki dekonwolucji krzywych świecenia [Bilski(Obryk)2007].



Rys. 4.3.3. Dekonwolucja krzywych świecenia detektorów MTS i MTT, uzyskanych po dawce 5 kGy od źródła <sup>60</sup>Co [Bilski(Obryk)2007].



Rys. 4.3.4. Zależność powierzchni poszczególnych pików detektorów LiF:Mg,Ti MTS od dawki. Linie kropkowane wskazują trend liniowy [Bilski(Obryk)2007].



Rys. 4.3.5. Zależność powierzchni poszczególnych pików detektorów LiF:Mg,Ti MTT od dawki. Linie kropkowane wskazują trend liniowy [Bilski(Obryk)2007].

Powyższe wykresy pokazują, że dla LiF:Mg,Ti (zarówno MTS jak i MTT), wszystkie piki wykazują nadliniową odpowiedź dawkową. Piki 4, 5 i 5a osiągają obszar wysycenia powyżej 1 kGy. Piki 9 i 7 nie ulegają wysyceniu nawet dla 10 kGy, dla tej dawki pik 7 jest najbardziej intensywnym pikiem, przy czym dla detektorów MTT nadliniowość jest nawet silniejsza. Charakterystyka detektorów MCP (rys. 4.3.2) wysyca się bez nadliniowości, z tym, że pik 7, który jest praktycznie nieobecny poniżej 10 Gy, wykazuje silną nadliniowość i dla 10 kGy jest większy niż pik główny 4. Charakterystyki te są pokazane też na rys. 4.3.6 w formie indeksu liniowości (patrz rozdział 2.3.3.2).



Rys. 4.3.6. Indeks liniowości głównych pików detektorów MTS, MTT i MCP [Bilski(Obryk)2007].

Dekonwolucja krzywych świecenia zawierających pik 'B' a uzyskanych z naświetlań fotonowych, za pomocą programu GlowFit [Puchalska2006] dla zakresu dawek 50-500 kGy [Bilski,Obryk2008], pozwoliła na stwierdzenie, że pik 'B' może być dopasowany za pomocą funkcji dla kinetyki pierwszego rzędu, ale dekonwolucja taka dała w wyniku bardzo wysokie wartości zarówno energii aktywacji jak i współczynników częstotliwości dla analizowanych pików 'B' (np. dla dawki 500 kGy: E=4,47 eV, s=5,6x10<sup>28</sup>s<sup>-1</sup>). Uzyskane wartości parametrów kinetycznych zostały przedstawione na rys. 4.3.7, stwierdzono również wzrost tych parametrów z rosnącą dawką.



Rys. 4.3.7. Pozycja maksimum piku na osi temperatur (puste kółka, skala z lewej) i energia aktywacji (wypełnione kółka, skala z prawej) dla piku 'B' w funkcji dawki [Bilski,Obryk2008].

Dekonwolucję krzywych świecenia uzyskanych dla wysokich dawek od protonów przeprowadził George Kitis [Kitis,Obryk2009], za pomocą programu MINUIT [MINUIT]. Dobroć dopasowania była testowana za pomocą FOM Bialiana i Eddy-ego [Balian1997]. Poniżej zostały przedstawione rezultaty dekonwolucji krzywych świecenia, będących wynikiem napromienienia detektorów MCP-N protonami 24 GeV/c, w zakresie dawek 0,01 – 1000 kGy i wynikające z nich energie aktywacji i współczynniki częstotliwości. Parametry pojedynczych pików składowych, będących wynikiem dekonwolucji krzywej świecenia dla dawki 1 MGy, przedstawiono w tabeli 4.3.1. Wykresy 4.3.8 i 4.3.9 przedstawiają wynik dekonwolucji tejże krzywej odpowiednio w skali liniowej i logarytmicznej, ze względu na fakt, że względne intensywności otrzymanych pików różnią się znacznie. W takiej sytuacji skala logarytmiczna pozwala unaocznić jakość dopasowania nawet dla części krzywej o najniższej intensywności.

Tabela 4.3.1. Parametry pojedynczych pików składowych uzyskanych z dekonwolucji krzywej świecenia detektora MCP-N, dla dawki 1 MGy od protonów o energii 24 GeV/c, dla FOM wynoszącego 0,0136; dla każdego piku podano pole powierzchni, natężenie i temperaturę jego maksimum, energię aktywacji oraz współczynnik częstotliwości [Kitis,Obryk2009].

Nr piku	Pole pod pikiem	Natężenie max. piku	T <sub>max</sub>	Ea	S
	ΣI [j.u.]	$I_{max}[j.u.]$	[°C]	[eV]	$[s^{-1}]$
1	$0,52 \times 10^4$	$0,10 \times 10^3$	186,8	0,98	$0,29 \times 10^{10}$
2	$0,52 \times 10^4$	$0,17 \times 10^3$	211,6	1,83	$0,97 \times 10^{18}$
3	$0,52 \times 10^4$	$0,17 \times 10^3$	231,3	1,93	$0,18 \times 10^{19}$
4	$0,43 \times 10^{5}$	$0,12 \times 10^4$	256,9	1,87	$0,47 \times 10^{17}$
5	$0,46 \times 10^5$	$0,81 \times 10^3$	279,0	1,23	$0,86 \times 10^{10}$
6	$0,50 \times 10^5$	$0,84 \times 10^{3}$	296,9	1,24	$0,42 \times 10^{10}$
7	$0,12 \times 10^{6}$	0,19x10 <sup>4</sup>	337,1	1,25	$0,17 \times 10^{11}$
8	$0,47 \times 10^{6}$	$0,10 \times 10^5$	391,8	2,20	$0,29 \times 10^{16}$
9	$0,56 \times 10^7$	0,16x10 <sup>6</sup>	446,3	3,55	$0,64 \times 10^{24}$
10	$0.35 \times 10^{6}$	$1,00 \times 10^4$	456,2	3,59	$0.52 \times 10^{24}$



Rys. 4.3.8. Zdekonwoluowana krzywa świecenia LiF:Mg,Cu,P pochodząca od dawki 1 MGy od protonów o energii 24 GeV/c (FOM=0,0136), skala liniowa [Kitis,Obryk2009].



Rys. 4.3.9. Zdekonwoluowana krzywa świecenia LiF:Mg,Cu,P pochodząca od dawki 1 MGy od protonów o energii 24 GeV/c (FOM=0,0136), skala logarytmiczna [Kitis,Obryk2009].

W tabeli 4.3.2 przedstawiono zestawienie pozycji maksimów pików składowych otrzymanych w wyniku dekonwolucji krzywych świecenia będących przedmiotem badań. Wyniki te zostały pokazane w formie graficznej na rys. 4.3.10. Natomiast rysunek 4.3.11 przedstawia charakterystykę dawkową (intensywność TL w funkcji dawki) dla powierzchni pików 1-10. Jak można zauważyć piki 1-7 ulegają stopniowemu wysyceniu poniżej dawki 10 kGy, pik 8 wysyca się dla około 100 kGy, pik 10 przy kilkuset kGy, natomiast pik 9 osiąga maksimum dopiero dla 1 MGy.

Tabela 4.3.2. Pozycje maksimów pików zdekonwoluowanych krzywych świecenia detektorów MCP-N, pochodzących od protonów o energii 24 GeV/c, dla dawek w zakresie 0,01 – 1000 kGy [Kitis,Obryk2009].

Dawka [kGy]		T <sub>max</sub> [°C]								FOM	
0,01	175,5	217,0	224,2	243,9	261,9						0,0170
0,02	178,5	217,3	224,8	243,9	262,7						0,0164
0,06	177,3	216,0	227,7	243,9	262,8						0,0177
0,75	174,7	216,1	231,9	246,0	267,6	306,9					0,0206
10	177,6	212,9	230,2	247,3	277,3	310,7	349,5	415,2		486,8	0,0097
120	186,9	219,8	236,3	251,3	281,4	314,8	356,6	397,0	416,9	452,4	0,0101
470	186,3	211,4	227,9	254,3	278,3	306,2	344,4	399,2	440,4	452,0	0,0178
1000	186,8	211,6	231,3	256,9	279,0	296,9	337,1	391,8	446,3	456,2	0,0136
Nr piku	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	



Rys. 4.3.10. Pozycje maksimów pików składowych zdekonwoluowanych krzywych świecenia dla detektorów MCP-N, pochodzących od protonów o energii 24 GeV/c, dla dawek w zakresie 0,01–1000 kGy.



Rys. 4.3.11. Zależność powierzchni poszczególnych pików składowych dla detektorów MCP-N od dawki, dla zdekonwoluowanych krzywych dwiecenia pochodzących od protonów o energii 24 GeV/c dla dawek w zakresie 0,01 – 1000 kGy.

Wyniki pokazane na rys. 4.3.11 mogłyby oferować możliwość kalibracji dawki w tym zakresie, jednak bezpośrednie użycie tych zależności jest ograniczone niepewnością w dekonwolucji poszczególnych pików oraz koniecznością stosowania charakterystyk różnych pików dla różnych zakresów dawek. Jednakowoż, uzyskane wyniki można w przyszłości wykorzystać kontynuując poszukiwania mechanizmu odpowiedzialnego za powstawanie piku 'B' we fluorku litu, poddanemu ekspozycji wysokimi dawkami promieniowania jonizującego.

## 4.4. Analiza spektralna widma termoluminescencji

Zbadany został również wpływ dawki promieniowania na widmo energetyczne emisji termoluminescencji [Bilski,Obryk2008; Mandowska(Obryk)2010]. Ekspozycje detektorów wykonała autorka tej pracy. Odczyt detektorów na spektrometrze połączonym z kamerą LN/CCD 1024E (Princeton Instruments), chłodzoną ciekłym azotem oraz dekonwolucję wyników na składowe piki Gaussa wykonała Ewa Mandowska z Akademii Jana Długosza w Częstochowie. Badaniu poddano detektory z próbek naświetlonych promieniowaniem gamma ze źródła <sup>60</sup>Co w KAERI (patrz rozdział 3.3.4), jako próbkę odniesienia użyto detektory z tej samej partii naświetlone przez autorkę na źródle <sup>137</sup>Cs w IFJ dawką 6,5 Gy.

Wyniki [Bilski,Obryk2008; Mandowska(Obryk)2010] zilustrowane są na rys. 4.4.1 i następnych. Jak można zauważyć, przy najwyższych dawkach pojawia się nowe pasmo emisji w zakresie około 500-700 nm. Niestety aparatura pomiarowa umożliwiała pomiary jedynie do temperatury ok. 350°C. Ograniczenie to uniemożliwiło zbadanie własności zasadniczej części piku 'B'.



Rys. 4.4.1. Widmo emisji termoluminescencji LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach promieniowaniem gamma dla dawek 6,5 Gy, 20 kGy i 500 kGy [Bilski,Obryk2008].

Rysunki 4.4.2a, b, c pokazują widma emisji termoluminescencji detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach promieniowaniem gamma w zakresie dawek promieniowania 6,5 Gy – 500 kGy, całkowane w zakresie temperatur 60-350°C. Widma dla dawek do 1 kGy składają się głównie z wąskiego piku dla długości fali około 350 nm (rys. 4.4.2a). Zakres długości fali widm emisyjnych dla tych próbek wynosi 300-550 nm. Dla dawek 5 – 20 kGy pojawia się dodatkowe pasmo emisji przy około 550 nm i zakres widma poszerza się do 300-800 nm (rys. 4.4.2b). Można też zauważyć, że natężenie piku dominującego (350 nm) w przedziale dawek 0,0065 – 20 kGy rośnie z dawką. Podobne zachowanie zostało również zaobserwowane dla piku dodatkowego (550 nm) w przedziale dawek 5-50 kGy (rys. 4.5.2b i c).





Rys. 4.4.2. Widma emisji termoluminescencji detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach promieniowaniem gamma całkowane w zakresie temperatur 60-350°C: a) dla dawek 6,5 Gy – 5 kGy; b) dla dawek 5 – 20 kGy; c) dla dawek 50-500 kGy. Wykresy wewnętrzne pokazują to samo widmo TL znormalizowane do wysokości piku głównego/dominującego [Mandowska(Obryk)2010].

Główna emisja dla dawek wyższych (100-500 kGy) nie została zarejestrowana z powodów technicznych (widma emisyjne mogły być mierzone tylko do 350°C). Przy najwyższych dawkach, rzędu setek kilogrejów, główna emisja rozciąga się aż do ponad 800 nm, podczas gdy emisja w obszarze 350 nm maleje i jest już praktycznie nieobecna przy dawce 500 kGy (patrz rys. 4.4.3 ukazujący wewnętrzny wykres z rys. 4.4.2c w powiększeniu).



Rys. 4.4.3. Widma emisji termoluminescencji detektorów LiF:Mg,Cu,P mierzone dla dawek 0,0065, 5, 20 kGy od promieniowania gamma, całkowane w zakresie temperatur 60-350°C i znormalizowane do wysokości piku głównego/dominującego [Bilski,Obryk2008].

Rys. 4.4.4 pokazuje widmo emisji termoluminescencji po naświetleniu dawką 20 kGy od promieniowania gamma. Dla temperatury około 250°C można zaobserwować przynajmniej dwa centra rekombinacyjne przy ok. 550 nm i 350 nm. Bardziej szczegółowa analiza ujawniła jeszcze bardziej złożoną strukturę.



Rys. 4.4.4. Wykresy izometryczny i konturowy widma emisji termoluminescencji detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach dawką 20 kGy od promieniowania gamma [Mandowska(Obryk)2010].

Rysunek 4.4.5 przedstawia wynik dekonwolucji widma emisyjnego TL (w funkcji energii) detektora MCP-N, naświetlonego dawką 100 kGy, na sześć pików gaussowskich [Mandowska(Obryk)2010]. Widmo to, tak jak uprzednio, zostało scałkowane dla zakresu temperatur 60-350°C. Na rys. 4.4.6 i w tabeli 4.4.1 pokazano pozycje maksimów pików widma emisji termoluminescencji uzyskanych z dekonwolucji, dla detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach promieniowaniem gamma w zakresie dawek od 6,5 Gy do 200 kGy. Widmo emisyjne TL dla detektorów po dawce 6,5 Gy można dopasować za pomocą dwóch pików Gaussa (zgodnie z wcześniejszymi pracami Meijvogela i Bosa, [Meijvogel1995]), ale dla dawek 0,5 i 1 kGy, niezbędna liczba pików rośnie już do trzech. Aby dopasować widmo emisyjne dla dawki 5 kGy trzeba było użyć czterech pików, dla 10-20 kGy pięciu, a sześciu dla dawek 50-200 kGy. Dodanie kolejnego piku praktycznie nie zmienia pozycji pozostałych pików w widmie. W szczególności pozycje dwóch z nich (dla 346 nm i dla 380 nm) są niezwykle

stabilne, i przy tym bardzo bliskie tym dla dawki najniższej, a mianowicie 6,5 Gy. Dla dawek poniżej 10 kGy główna emisja jest powiązana z gwałtownie malejącym pikiem 2, na który ma wpływ również procedura anilacji i który dominuje w głównym piku widma. Pik 1 jest bardziej stabilny z rosnącą dawką, jak również pozostaje prawie niezmienny przy różnych procedurach obróbki termicznej detektorów [Meijvogel1995].



Rys. 4.4.5. Wynik dekonwolucji gaussowskiej widma emisji termoluminescencji detektorów LiF:Mg,Cu,P naświetlonych dawką 100 kGy od promieniowania gamma (całkowanie w zakresie temperatur 60-350°C [Mandowska(Obryk)2010].

Wzrost z dawką liczby pików w obszarze długofalowym widma, wydaje się wskazywać na powstawanie nowych centrów rekombinacji. Pozycje pików w widmie są stabilne, tylko niektóre z nich wykazują niewielkie przesunięcie ku czerwieni w miarę jak dawka rośnie. Wyjaśnienie tego zjawiska nie jest oczywiste. Ostatnie modele teoretyczne dla detektorów LiF:Mg,Cu,P i LiF:Mg,Ti [Moskovitch2007; Mandowski2006] zakładają równoczesne zlokalizowane i niezlokalizowane rekombinacje. W przypadku rekombinacji zlokalizowanych, średnia odległość między pułapkami i centrami rekombinacji maleje z rosnącą dawką pod warunkiem, że nie następuje wysycenie liczby pułapek. Wynikiem tego może być zmniejszanie się odległości poziomów energetycznych, co za tym idzie przesunięcie ku czerwieni długości fali emitowanych fotonów.



Rys. 4.4.6. Pozycje maksimów uzyskanych z dekonwolucji pików widma emisji termoluminescencji detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach promieniowaniem gamma w zakresie dawek promieniowania od 6,5 Gy do 200 kGy [Mandowska(Obryk)2010].

Tabela 4.4.1. Pozycje maksimów uzyskanych z dekonwolucji pików widma emisji termoluminescencji detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach promieniowaniem gamma w zakresie dawek promieniowania od 6,5 Gy do 200 kGy [Mandowska(Obryk)2010].

Dawka [kGy]	λ piku [nm]					
0,0065	345	372				
0,05	350	379	428			
1	350	381	433			
5	346	380	433	539		
10	346	381	436	543	618	
20	346	381	442	543	616	
50	346	378	443	541	614	707
100	348	380	471	540	605	724
200	349	378	478	540	610	722

Po modernizacji stanowiska do spektralnej analizy TL planuje się pomiar widm emisyjnych do temperatur wyższych od 350°C.

### 4.5. Fading piku wysokotemperaturowego 'B'

Część detektorów LiF:Mg,Cu,P naświetlonych promieniowaniem gamma w KAERI (patrz rozdział 3.3.4) była przechowywana w temperaturze pokojowej celem zbadania fadingu zaobserwowanego piku 'B'. Fading badano po okresie 85 dni oraz 4,5 lat po ekspozycji.

Jakościowa ocena krzywych świecenia pokazała, że po 54 miesiącach (4,5 roku) od ekspozycji fotonami ze źródła <sup>60</sup>Co w KAERI, charakter otrzymanych dla tych detektorów krzywych świecenia nie uległ widocznej zmianie (rys. 4.5.1) w stosunku do detektorów odczytywanych kilkadziesiąt dni po ekspozycji (rysunki 4.1.1.3 - 5).



Rys. 4.5.1. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach <sup>60</sup>Co dla zakresu dawek 0,5 kGy-500 kGy, odczytane po upływie 54 miesięcy od ekspozycji w KAERI.

Krzywe świecenia uzyskane dla odczytu po 85 dniach od ekspozycji, jak również uzyskane w pierwszym odczycie, dla detektorów eksponowanych dawką 500 kGy przedstawiono na rys. 4.5.2. Nie zauważono różnicy kształtu i położenia piku 'B' pomiędzy kolejnymi odczytami.



Rys. 4.5.2. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach <sup>60</sup>Co dla dawki 500 kGy, odczytane w odstępie 85 dni.

Na rys. 4.5.3 zestawiono krzywe uzyskane w ten sposób dla dawki 50 kGy. Dla nich też nie zaobserwowano różnic kształtu, ale zaznacza się niewielkie przesunięcie krzywych, uzyskanych w późniejszym odczycie, w stronę niższych temperatur.



Rys. 4.5.3. Krzywe świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach <sup>60</sup>Co dla dawki 50 kGy, odczytane w odstępie 85 dni.

W tabeli 4.5.1 zostały przedstawione względne procentowe różnice sygnału TL, całkowanego w różnych przedziałach temperatur, odniesione do sygnału pierwotnego, dla obu odczytów przeprowadzonych w odstępie 85 dni, dla detektorów LiF:Mg,Cu,P pochodzących z próbek eksponowanych w zakresie dawek 1-500 kGy. Przedziały całkowania dobrano do obserwowanej dla wszystkich badanych rodzajów promieniowania trójzakresowej struktury krzywych świecenia detektorów LiF:Mg,Cu,P, które w zależności od zakresu dawek wykazują gros sygnału TL poniżej 250°C, w obszarze 250-350°C, lub powyżej 350°C, gdzie dominuje pik 'B' (rozdział 4.1). Liczby 'szare' dotyczą sytuacji, gdzie mamy do czynienia z różnicą małych liczb obarczonych dużymi błędami, wkład sygnału z tych przedziałów jest bowiem niewielki dla dawek, do których liczby te się odnoszą. Sygnał TL dla pełnego zakresu temperatur (100-550°C) wykazuje zmiany kilkuprocentowe, tak jak i sygnał w zakresach temperatur, dominujących w krzywej w danym przedziałe dawek (patrz rozdział 5.1). Fading piku 'B' nie różni się od fadingu podstawowych pików dla detektorów LiF:Mg,Cu,P. Wyniki te mogą służyć do korekcji wskazań detektorów, odczytywanych po około 3 miesiącach od momentu ekspozycji.

Dawka [kGy]	Σ(100-550°C) [%]	Σ(100-250°C) [%]	Σ(250-350°C) [%]	Σ(250-550°C) [%]	Σ(350-550°C) [%]
1	9,75±5,38	7,52±5,24	29,16±12,56	29,45±12,50	59,12±9,05
5	7,39±2,85	-2,83±14,34	18,09±10,31	19,21±10,76	44,98±26,77
10	-1,21±12,86	-24,45±11,95	7,33±12,59	10,43±14,18	42,78±26,41
20	-0,74±7,77	0,36±6,11	-6,42±10,28	-1,09±9,31	22,66±11,59
50	5,47±1,67	-3,85±7,93	-5,03±2,92	6,68±2,63	16,80±5,47
100	5,43±14,97	3,82±14,35	5,24±18,18	5,55±15,34	5,68±14,86
200	8,44±12,20	7,71±11,60	0,19±12,20	8,46±12,28	10,11±12,42
500	3,37±6,43	12,54±34,14	-0,99±9,56	3,25±6,34	3,57±6,23

Tabela 4.5.1. Względna zmiana sygnału TL (fading) całkowanego dla różnych zakresów temperatur w okresie 85 dni dzielących kolejne odczyty detektorów LiF:Mg,Cu,P po ekspozycji <sup>60</sup>Co w zakresie dawek od 1-500 kGy.

# 5. Metoda pomiaru wysokich dawek promieniowania jonizującego za pomocą detektorów LiF:Mg,Cu,P

Wyniki systematycznych pomiarów zależności krzywych świecenia w funkcji dawki stanowiły punkt wyjścia do opracowania metody pomiaru dawek promieniowania jonizującego za pomocą detektorów LiF:Mg,Cu,P w zakresie od 1 µGy do 1 MGy (12 rzędów wielkości). Zazwyczaj za parametr opisujący sygnał termoluminescencji przyjmuje się scałkowaną liczbę zliczeń w zakresie mierzonych temperatur lub wysokość głównego piku krzywej (patrz rozdział 2.3.3.4). W przypadku krzywych świecenia, będących przedmiotem analizy, konieczna była modyfikacja tego podejścia, przy czym sposób postępowania nie był oczywisty. W zakresie stosunkowo niskich dawek (do około 1-3 kGy), można stosować standardową metodę kwantyfikacji krzywej, polegającą na całkowaniu głównego piku dozymetrycznego. Jednak dla dawek wyższych, ze względu na całkowitą zmianę kształtu krzywej i przesuwanie się pozycji piku 'B', nie jest to możliwe.

### 5.1. Trzy zakresy pomiaru dawek

Kalibracje odpowiedzi detektorów MCP-N w funkcji dawki autorka przeprowadziła wykorzystując część wysokotemperaturową krzywych świecenia detektorów eksponowanych w polu promieniowania gamma (<sup>60</sup>Co), scałkowanych w przedziałach temperatur: 250-350°C oraz 350-600°C. Zależność sygnału TL od dawki została przedstawiona na rys. 5.1.1, linie ciągłe przedstawiają trend liniowy dla obu zakresów całkowania. Otrzymane zależności pokazują, że jest możliwy na tej drodze pomiar dawek do 500 kGy, przy wykorzystaniu liniowych części obu uzyskanych charakterystyk.



Rys. 5.1.1. Odpowiedź na dawkę sygnału TL scałkowanego w zakresach 250-350°C oraz 350-600°C. Krzywe ciągłe obrazują trend liniowy [Bilski,Obryk2008].

Autorka zaproponowała całkowanie sygnału TL w trzech ustalonych przedziałach temperatury: <250°C, 250-350°C i >350°C. Taki dobór zakresów całkowania powoduje, że konwencjonalna krzywa świecenia z głównym pikiem dozymetrycznym (pik 4), zawiera się niemal w całości w obszarze pierwszym, obszar drugi obejmuje większość sygnału dla dawek pośrednich, natomiast pik 'B' mieści się w obszarze trzecim. Podział na zakresy zilustrowany jest na rysunku 5.1.2 na podstawie krzywych świecenia dla naświetlań gammowych i protonowych.



Rys. 5.1.2. Zakresy sumowania sygnału TL: 0-250°C, 250-350°C oraz 350-550°C, zilustrowane na przykładzie trzech krzywych świecenia: A) zmierzonych po dawkach od promieniowania gamma: 1 kGy, 20 kGy, i 500 kGy [Obryk2009]; B) zmierzonych po dawkach od protonów: 0,75 kGy, 10 kGy, i 1000 kGy [Obryk2010].

Granice przedziałów całkowania nie są wartościami bezwzględnymi, powinny być nieznacznie modyfikowane w zależności od rzeczywistej szybkości narastania temperatury detektora (w pomiarach stosowano nominalną szybkość 2°C/s). Można je korygować poprzez sprawdzenie położenia piku głównego (dla niskich dawek), który dla stosowanych na potrzeby pracy grup detektorów i warunków pomiaru znajdował się w temperaturze ok. 225°C. W przypadku przesunięcia temperatury tego piku, również granice całkowania należałoby odpowiednio przesunąć.

Natomiast zależność liczby zliczeń, we wszystkich trzech wyodrębnionych wyżej obszarach krzywej świecenia, od dawki (skala logarytmiczna) przedstawiona jest na rys. 5.1.3. Jak można zaobserwować, zakres stosowalności pierwszego obszaru to poniżej 5 kGy, drugiego 5-50 kGy, a trzeciego powyżej 50 kGy.



Rys. 5.1.3. Charakterystyka dawkowa dla trzech zakresów sumowania sygnału TL: 0-250°C, 250-350°C i 350-550°C uzyskana dla ekspozycji gamma od <sup>60</sup>Co [Obryk2009].

## 5.2. Metoda pomiaru dużych dawek przy pomocy współczynnika UHTR

Metodę wyznaczania dawki w zakresie dawek powyżej ok. 5 kGy, można ulepszyć zastępując bezwzględną liczbę zliczeń, stosunkiem liczby zliczeń w obszarach drugim i trzecim (>250°C) do całkowitej liczby zliczeń. Uzyskuje się w ten sposób parametr, słabiej zależny od warunków pomiaru.

Współczynnik wysokotemperaturowy  $UHTR(T_x)$  zdefiniowano jako stosunek sygnału TL scałkowanego dla temperatur powyżej temperatury  $T_x$ , do całkowitego sygnału TL, czyli

$$UHTR(T_x) = \frac{\sum_{T=T_x}^{T_{max}} I_T}{\sum_{T=T_{min}}^{T_{max}} I_T}$$
(5.2.1)

gdzie

 $I_T$  – sygnał TL w temperaturze T,

 $T_{min}$ ,  $T_{max}$  – minimalna i maksymalna temperatura odczytu detektora.

Z punktu widzenia opisywanej metody szczególnie interesujące są współczynniki UHTR( $T_x$ ) policzone dla temperatur  $T_x = 250^{\circ}$ C i  $T_x = 350^{\circ}$ C, jako że są to temperatury graniczne pomiędzy obszarami, które dominują w krzywych świecenia przy różnych zakresach dawek. Dla dawek poniżej 1 kGy prawie cała krzywa świecenia znajduje się poniżej temperatury 250°C. Dla dawek wyższych, aż do około 50 kGy, dominuje w krzywej obszar 250°C - 350°C, podczas gdy dla dawek powyżej 50 kGy większość krzywej świecenia jest mierzona powyżej 350°C.

Zależność współczynnika wysokotemperaturowego UHTR(350) w funkcji dawki, dla trzech serii produkcyjnych detektorów LiF:Mg,Cu,P, naświetlonych elektronami o energii 10 MeV i odczytanych w identycznych warunkach w tym samym czasie, przedstawiona została na rys. 5.2.1. Rozrzut przebiegu krzywych sugeruje potrzebę pomiaru charakterystyki dawkowej dla konkretnej partii detektorów, którą planuje się wykorzystać w pomiarach.



Rys. 5.2.1. Zależność współczynnika wysokotemperaturowego UHTR(350) od dawki, dla trzech serii produkcyjnych detektorów LiF:Mg,Cu,P, wyznaczona po ekspozycji elektronami o energii 10 MeV.

Rys. 5.2.2 przedstawia porównanie zależności UHTR(350) od dawki dla detektorów LiF:Mg,Cu,P z serii produkcyjnej 1 (P1, patrz rozdział 3.1), zmierzonej po ekspozycji promieniowaniem gamma od <sup>60</sup>Co oraz elektronami o energii 10 MeV, z zależnością dla detektorów z drugiej serii produkcyjnej, MCP-N(P2), zmierzoną po ekspozycji elektronami o energii 10 MeV oraz protonami o energii 24 GeV/c. Wartości współczynnika wysokotemperaturowego UHTR(350), obliczone na podstawie analizy krzywych świecenia detektorów MCP-N pochodzących z produkcji 1 (P1), po ekspozycji w wiązkach fotonowej i elektronowej, układają się wzdłuż tej samej krzywej, a wartości tego współczynnika dla

detektorów MCP-N(P2) po naświetlaniach protonowych, układają się zgodnie (w granicy błędu pomiarowego) z relacją UHTR(350) dla naświetlań elektronowych detektorów MCP-N(P2).



Rys. 5.2.2. Zależność współczynnika wysokotemperaturowego UHTR(350) od dawki dla detektorów MCP-N (seria produkcyjna pierwsza, P1), wyznaczona po ekspozycji promieniowaniem gamma <sup>60</sup>Co i elektronami o energii 10 MeV oraz dla detektorów MCP-N (seria produkcyjna druga, P2), wyznaczona po ekspozycji elektronami o energii 10 MeV i protonami o energii 24 GeV/c.

Na rys. 5.2.3 przedstawiono zależność współczynnika UHTR(T<sub>x</sub>) obliczonego dla obu temperatur granicznych pomiędzy charakterystycznymi obszarami krzywej świecenia, 250°C i 350°C. W części A tego rysunku, razem z wynikami dla naświetlań elektronami pokazano wartości dla naświetlań gammowych dla tej samej serii produkcyjnej detektorów MCP-N(P1), natomiast wyniki naświetlań elektronami dla drugiej serii produkcyjnej detektorów MCP-N(P2) zobrazowano w części B, razem z wynikami ekspozycji protonami o energii 24 GeV/c, wykonanymi na detektorach z tej samej serii. Zebrane wyniki uzasadniają tezę, że współczynnik UHTR(250) może być używany do dozymetrii już od dawki 1 kGy, a ulega on nasyceniu powyżej 100 kGy. Natomiast UHTR(350) zaczyna być użyteczny od około 20 kGy i nie ulega wysyceniu aż do około 1 MGy. W ten sposób jest pokryty cały przedział dawek od 1 kGy do 1 MGy.





Rys.5.2.3. Współczynniki UHTR(250) i UHTR(350) w funkcji dawki dla: A) MCP-N(produkcja 1, P1); symbole puste przedstawiają wyniki dla naświetlań elektronami, natomiast pełne ilustrują naświetlania gammowe [Bilski,Obryk2010]; B) MCP-N(produkcja 2, P2); symbole pełne przedstawiają wyniki dla naświetlań protonami, natomiast puste ilustrują naświetlania elektronami [Obryk2010].

Zastosowanie metody UHTR wymaga wyznaczenia zależności UHTR( $T_x$ ) w funkcji dawki dla poszczególnych grup produkcyjnych detektorów, gdyż relacje między współczynnikiem UHTR( $T_x$ ) a dawką, różnią się dla nich. W związku z powyższym dopasowano współczynniki UHTR dla detektorów z serii produkcyjnej 2, dla których wykonane były zarówno naświetlania elektronowe jak i protonowe. W tym celu wykorzystany został program TableCurve 2D [TableCurve]. Dla obu współczynników najlepsze dopasowanie (na poziomie ufności 95% [Brandt1998]), otrzymano dla funkcji wielomianowych, trójparametrowych, postaci y<sup>-1</sup>=a+blnx/x+c/x<sup>1,5</sup> dla UHTR(250), a y<sup>-1</sup>=a+blnx/x+c/x<sup>2</sup> dla UHTR(350) [Obryk2010sub]. Parametry obu dopasowanych krzywych zamieszczono w tabeli 5.2.1. Otrzymano w ten sposób krzywe kalibracyjne metody dla detektorów z serii produkcyjnej 2 (P2). Oba dopasowania oraz punkty kalibracyjne dla obu współczynników przedstawiono na rys. 5.2.4.

Parametry krzywych	UHTR(250)	UHTR(350)
а	0,99±0,01	0,96±0,01
b	1,85±0,21	11,42±0,92
с	10,34±1,16	3245,01±280,75

Tabela 5.2.1. Parametry dopasowanych krzywych: UHTR(250) (y<sup>-1</sup>=a+blnx/x+c/x<sup>1,5</sup>) oraz UHTR(350) (y<sup>-1</sup>=a+blnx/x+c/x<sup>2</sup>)



Rys. 5.2.4. UHTR(250) i UHTR(350) w funkcji dawki dla detektorów MCP-N(P2) wraz z dopasowaniem krzywej kalibracyjnej dla obu współczynników [Obryk2010sub].

Zaletą zaproponowanej metody, polegającej na wyznaczaniu dawki przy użyciu stosunku sygnału TL całkowanego w różnych zakresach temperaturowych krzywej świecenia, jest zmniejszenie wpływu fadingu sygnału TL na wyznaczenie dawki, ze względu na częściową kompensację osłabienia sygnału. Wpływ trzymiesięcznego fadingu (patrz rozdział 4.5) na wartości współczynników UHTR(250) i UHTR(350), wyznaczonych po ekspozycji detektorów MCP-N(P1), promieniowaniem gamma ze źródła <sup>60</sup>Co w KAERI, został przedstawiony na rys. 5.2.6. Badania dotyczące fadingu będą kontynuowane, szczególnie w kierunku zbadania relacji między zanikiem poszczególnych obszarów krzywej świecenia.



Rys. 5.2.6. Wartości UHTR(250) i UHTR(350) w funkcji dawki dla detektorów MCP-N(P1) naświetlonych <sup>60</sup>Co w KAERI i odczytanych w odstępie 85 dni.

## 6. Testy i zastosowania metody w akceleratorowych polach promieniowania

## 6.1. Test metody w polu elektronowym

Celem przetestowania zaproponowanej metody przeprowadzono naświetlania próbek z detektorami LiF:Mg,Cu,P dawkami nieznanymi autorce, za pomocą wiązki elektronowej o energii 10 MeV w Instytucie Chemii i Technik Jądrowych w Warszawie. Poddano naświetlaniom cztery próbki zawierające po dwadzieścia detektorów MCP-N(P2) w każdej, każda z nich otrzymała inną dawkę. Rysunek 6.1.1 przedstawia zdjęcie otwartych pojemników z naświetlonymi detektorami po zakończeniu ekspozycji próbek. Zabarwieniu detektorów naświetlonych wysokimi dawkami (patrz DODATEK A) towarzyszyło również zabarwienie wieczek pojemników z próbkami.



Rys. 6.1.1. Zdjęcie pojemników z detektorami LiF:Mg,Cu,P po zakończeniu ekspozycji różnymi dawkami od elektronów o energii 10 MeV, ilustrujące zabarwienie naświetlonych detektorów (patrz DODATEK A) oraz polietylenowych pokrywek pojemników.

Krzywe świecenia uzyskane dla detektorów MCP-N(P2) pochodzących z kolejnych próbek zostały przedstawione na rysunku 6.1.2. W krzywych uzyskanych w wyniku odczytu detektorów z próbek II, III i IV występuje wyraźnie wyodrębniony pik 'B'. Parametry UHTR(250) i UHTR(350) zostały wyznaczone dla detektorów z każdej próbki. Dawki zostały wyznaczone przy użyciu uprzednio dopasowanej krzywej kalibracyjnej dla tych parametrów (patrz rozdział 5.2, rysunek 5.2.4). Po wyznaczeniu dawek poproszono laboratorium, które wykonało naświetlania o przesłanie świadectwa pomiarowego, celem porównania uzyskanych wyników z dawkami celowanymi. Uzyskane wyniki zostały przedstawione w tabeli 6.1.1 [Obryk2010sub].



Rys. 6.1.2. Krzywe świecenia detektorów MCP-N(P2) otrzymane w ślepym teście dawki dla naświetlań elektronami o energii 10 MeV [Obryk2010sub].

Tabela 6.1.1. Wyniki testu metody UHTR dla detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniac	h
elektronami o energii 10 MeV [Obryk2010sub].	

MCP-N(P2)	Próbka I	Próbka II	Próbka III	Próbka IV
UHTR(250)	0,243±,010	0,872±,004	0,937±,005	0,946±,002
UHTR(350)	-	0,498±,009	0,710±,012	0,751±,004
Dawka wyznaczona z UHTR(250) [kGy]	2,71±0,6	59±6	136±11	159±13
Dawka wyznaczona z UHTR(350) [kGy]	-	85±6	170±14	205±16
Dawka zastosowana [kGy]	4,77±0,36	74,9±4,5	152±9,1	199±11,9

Zgodnie z przewidywaniami za pomocą parametru UHTR(350) można określać dawki w zakresie występowania piku 'B' w krzywej świecenia, czyli od około 50 kGy aż do ok. 1 MGy, podczas gdy parametr UHTR(250) może być stosowany do wyznaczania dawek już od około kilku Gy. Dawka najniższa, dla próbki I, znajduje się w zakresie dawek niskich, w którym wypracowane dopasowanie parametru UHTR(250) nie jest najlepsze, ze względu na słabe obsadzenie tego obszaru punktami otrzymanymi z wykonanych wcześniej kalibracji metody.

#### 6.2. Zaproponowany zestaw pomiarowy

## 6.2.1. Kaseta pomiarowa z detektorami TL

Celem wdrożenia metody do rutynowego stosowania w pomiarach dawek promieniowania w akceleratorach cząstek poszukiwano zestandaryzowanych pojemników na detektory TL, umożliwiających pomiary w setkach/tysiącach punktów pomiarowych równocześnie.

Ze względów praktycznych autorka zdecydowała oprzeć się na istniejącej kasecie dozymetrycznej automatycznego systemu dozymetrii termoluminescencyjnej firmy RADOS. Jest to jeden z najbardziej rozpowszechnionych na świecie systemów, a w IFJ Kraków znajduje się kilka czytników TL typu RADOS. Czytniki te umożliwiają szybki, automatyczny odczyt dużej liczby detektorów w krótkim czasie, przy wykorzystaniu grzania strugą gorącego azotu. Kaseta systemu RADOS pozwala na użycie czterech detektorów termoluminescencyjnych. Jej szczególną zaletą jest możliwość swobodnego dobierania detektorów (o ile mają odpowiednie rozmiary), jak również wyjmowania ich i dokonywania odczytu na czytniku ręcznym (automatyczny czytnik RADOS pozwala jedynie na odczyt w stałej temperaturze).

Jednym z problemów, które należało rozwiązać była dynamika sygnału TL w badanym zakresie dawek, która znacznie przekracza dynamikę elektroniki czytników TL. Postanowiono, że jeden z detektorów w zestawie zostanie użyty jako zgrubny wskaźnik poziomu dawki [Obryk2009]. W tym celu użyty został detektor z litu naturalnego LiF:Mg,Ti (MTS-N). W pierwszym cyklu pomiarowym jedynie te detektory będą odczytywane w czytniku automatycznym i jeżeli wyniki będą wskazywać na dawki poniżej 1 Gy, to reszta odczytów zostanie również przeprowadzona w czytniku automatycznym. Jeżeli detektor MTS-N wskaże wyższą dawkę, czemu towarzyszyć może nasycenie sygnału fotopowielacza czytnika, reszta odczytów zostanie przeprowadzona na czytniku ręcznym, umożliwiającym filtrację sygnału oraz grzanie liniowe z odpowiednio dobranymi warunkami odczytu (napięcie fotopowielacza, przesłona, temperatura).



Rys. 6.2.1.1. Kaseta dozymetryczna systemu RADOS z zestawem detektorów TL przeznaczonych do pomiaru wysokich dawek [Obryk2008a; Obryk2009].

Podstawowymi detektorami pomiarowymi są dwa detektory LiF:Mg,Cu,P (MCP-7) wykonane z litu wzbogaconego w izotop <sup>7</sup>Li (99.95%) [Obryk2009; Obryk2010sub]. Zestaw uzupełnia jeden detektor typu MTS-7, który w zakresie do kilku kilogrejów może być zastosowany równolegle do MCP. Jego użycie, ze względu na różną zależność wydajności TL od gęstości jonizacji w porównaniu do MCP-7, może pozwolić na uzyskanie dodatkowych informacji o polu promieniowania. W razie potrzeby pomiaru depozycji energii od neutronów termicznych i epitermicznych, planuje się zastąpić w zestawie jeden z detektorów MCP-7, detektorem MTS-6 (taki zestaw przedstawiono na rys. 6.2.1.1), co umożliwi pomiar składowej neutronowej za pomocą pary detektorów MTS-7 i MTS-6 (patrz rozdział 2.3.3.5).

## 6.2.2. Pasywny zestaw pomiarowy na potrzeby LHC.

W przypadku pomiarów, które miały być wykonywane w LHC, konieczne było zintegrowanie opracowywanego zestawu pomiarowego TL z innymi pasywnymi metodami pomiarowymi, których użycie było planowane przez CERN. Metody te to: alanina (PAD), detektory radiofotoluminescencyjne (RPL) oraz diody p-i-n W rezultacie opracowany został pasywny zestaw pomiarowy (passive sensor housing), tzw. "box" [Ilgner2007; Obryk2009]. Składa się on z polietylenowej kasety, umożliwiającej umieszczenie czterech wymienionych typów detektorów z optymalnym wykorzystaniem dostępnego miejsca oraz z uchwytu (również polietylenowego), przytwierdzanego trwale do ścian lub elementów konstrukcyjnych LHC (rys. 6.2.2.1). Konstrukcja zapewnia szybkie i pewne wkładanie i wyjmowanie kasety z uchwytu.



Rys. 6.2.2.1. Pasywny zestaw pomiarowy ("box") opracowany na potrzeby monitoringu LHC [Obryk2008b; Obryk2009].

## 6.3. Testy w referencyjnym polu promieniowania CERF w CERN

Testy w referencyjnym polu promieniowania CERF (patrz rozdział 4.1.9) zostały przeprowadzone w zakresie dawek wysokich (bezpośrednio na miedzianej tarczy) oraz niskich (pozycje CT i CS za osłonami betonowymi).

W przypadku ekspozycji bezpośrednio na tarczy, najistotniejszych z punktu widzenia projektu, wartości dawki zmierzone detektorami TL porównywane były z wynikami obliczeń Monte Carlo [Fasso2003; Fasso2005], przeprowadzonymi przez zespół z CERN-u [Obryk2008]. Na rysunku 6.3.1 przedstawiono zestawienie eksperymentu wysokodawkowego oraz jego model wykonany na potrzeby obliczeń Monte Carlo. Na rysunku 6.3.2 z kolei pokazano widma cząstek w pozycjach naświetlań, uzyskane przez Markusa Fuerstnera metodami Monte Carlo, we wszystkich tych pozycjach dominowały fotony.



Rys.6.3.1. Zestawienie eksperymentu na miedzianej tarczy w polu CERF (a) oraz model eksperymentu na potrzeby symulacji Monte Carlo (b), gdzie na zielono zaznaczono pozycje detektorów TL [Obryk2008].



Rys.6.3.2. Widma cząstek w pozycjach naświetlań na tarczy pola CERF, uzyskane metodami Monte Carlo [Obryk2008].

Wyniki eksperymentu na miedzianej tarczy podają tabele 6.3.1 i 6.3.2. Maksymalny poziom osiągniętych dawek sięgał stu kilkudziesięciu grejów. Uzyskane wyniki, wyrażone jako stosunek wartości obliczonej do zmierzonej, wahały się od 0,88 do 1,23 (tabela 6.3.1). Biorąc pod uwagę dość znaczne niepewności symulacji, zgodność tę należy uznać za satysfakcjonującą. Ekspozycje detektorów TL zostały również przeprowadzone w czasie kolejnych uruchomień CERF-u w lipcu i we wrześniu 2008 roku.

Tabela 6.3.1. Dawka pochłonięta w powietrzu (obliczona przez Markusa Fuerstnera) i zmierzona detektorami TL (kalibracja do kermy w powietrzu dla promieniowania gamma ze źródła <sup>137</sup>Cs) w [Gy] w pozycji detektora (P) na tarczy [Obryk2008].

Ρ		Pon	niar		Niepewność pomiaru	Symulacja	Niepewność symulacji	R=symulacja/ pomiar	Niepewność R
	MTS-N	MTS-7	MCP-7	MCP-N	MCP-N				
1	13,6	ND	10,8	12,7	1,3	11,8	0,9	0,93	0,16
2	29,0	24,9	ND	26,5	3,5	27,8	2,7	1,05	0,24
3	24,6	ND	24,4	23,3	2,3	27,5	1,7	1,18	0,19
4	12,3	8,2	ND	10,7	1,1	11,8	0,4	1,10	0,15
5	17,6	14,9	ND	16,2	1,7	16,1	0,8	1,00	0,16
6	51,8	ND	44,0	46,2	4,7	40,8	2,1	0,88	0,13
7	39,8	39,5	ND	43,2	5,3	40,4	1,2	0,93	0,14
8	16,2	ND	12,8	13,7	1,5	16,9	2,9	1,23	0,34

Bezpośrednio na miedzianej tarczy wykonano również ekspozycje zestawu typu 'box' (rozdział 6.2), zawierającego poza detektorami TL, również alaninę. Dla tego zestawu wykonano sześć kolejnych naświetlań o rosnących dawkach, wyniki przedstawiono w tabeli 6.3.2. Rezultaty otrzymane za pomocą detektorów TL wykazują zgodność na poziomie lepszym niż ok. 30% z wynikami dla alaniny tylko dla większych dawek. Dla dawek poniżej 10 Gy, dla których alanina nie jest na ogół stosowana, różnice dochodzą do 100%.

Nr	MTS-N	MTS-6	MTS-7	MCP-N	Alanina
B1	3,3±0,1	4,3±0,2	3,9±0,1	3,5±0,2	6,7±3,1
B2	2,9±0,2	3,5±0,6	3,7±0,1	3,1±0,3	ND
B3	3,1±0,3	3,7±0,1	3,8±0,2	3,2±0,1	7,7±1,5
B4	2,7±0,5	$3,2\pm0,5$	2,8±0,5	3,3±0,5	6,3±1,5
B5	106±11	141±5	124±5	95±8	129±6
B6	62±10	75±10	66±3	52±2	69±3

Tabela 6.3.2. Dawka [Gy] pomierzona detektorami TL i alaniną w kolejnych naświetlaniach (B1-B6) zestawu 'box' [Obryk2008].

Odpowiedź detektorów TL różnych typów w zakresie niskich dawek zaabsorbowanych na polach CT CERF-u (za osłoną betonową, patrz rys. 6.3.3) została przedstawiona w tabeli 6.3.3. Wyniki te są wzajemnie konsystentne, detektory MTS-N i MTS-6 wykazały wyższy

sygnał niż ich MCP-odpowiedniki. Jest to związane z ich wyższą wydajnością na silnie jonizujące produkty reakcji (n, $\alpha$ ) w <sup>6</sup>Li. Stosunek odpowiedzi MTS-N do MCP-N, jak i MTS-6 do MCP-6, na termiczne i epitermiczne neutrony jest stały dla wszystkich pozycji CT i wynosi 2,8±0,05, co jest zgodne z wynikami eksperymentu na polach CS (tabela 6.3.4), jak i z poprzednimi badaniami [Bilski 2006]. Natomiast stosunek odpowiedzi MTS-7 i MCP-7 jest bliski jedynki. Wyniki te są zgodne z wynikami wcześniejszych naświetlań detektorów TL na polach CT [Bilski2002a]. Trzeba zaznaczyć, że natężenie wiązki jest mierzone z dokładnością 10% za pomocą komory jonizacyjnej (PIC - Precision Ionisation Chamber), a jeden impuls PIC odpowiada (2,2 ± 0,1)×10<sup>4</sup> cząstek uderzających w tarczę [Mitaroff2002].



Rys. 6.3.3. Testy detektorów TL na polu CT eksperymentalnego pola promieniowania CERF w CERN.

Tablica 6.3.3. Wskazanie detektorów TL na polach CT CERF-u [pGy] znormalizowane na jednostkę monitora wiązki [PIC-impuls]. Detektory były kalibrowane w jednostkach kermy w powietrzu na źródle <sup>137</sup>Cs [Obryk2008].

Nr pola.	MCP-N	MCP-6	MCP-7	MTS-N	MTS-6	MTS-7
CT1	58,5±1,3	73,3±2,3	53,5±1,5	85,0±2,4	112,0±0,3	49,4±0,5
CT3	60,6±1,4	ND	ND	76,7±0,6	128,9±1,6	43,5±0,2
CT4	51,6±1,2	69,9±0,6	45,0±0,7	76,8±1,2	ND	ND
CT5	77,0±1,2	98,5±2,9	70,3±1,6	116,7±3,6	149,0±1,3	71,1±0,7
CT8	70,8±1,1	96,8±0,8	65,1±0,4	107,4±0,8	ND	ND
CT9	77,1±1,7	99,9±3,0	71,3±0,5	118,3±1,1	151,5±0,6	69,7±0,3
CT12	72,7±0,6	102,5±0,4	64,6±0,4	110,8±0,4	ND	ND
CT13	74,4±4,6	99,9±2,5	70,2±1,2	112,8±5,0	141,0±0,6	59,1±0,1
CT15	70,6±0,9	ND	ND	96,9±2,5	162,4±1,0	50,6±1,3
CT16	67,8±0,6	93,4±0,9	56,9±0,1	100,8±0,2	ND	ND

Przetestowany został również wpływ moderacji prędkich neutronów przy użyciu cylindrów z PMMA o średnicy 25 cm (rys. 4.1.9.3) na efektywność detekcji neutronów za pomocą detektorów TL [Obryk2008]. Wyniki tego eksperymentu, przeprowadzonego na polach CS zamieszczono w tabeli 6.3.4. Wyniki te pokazują, że moderatory z PMMA o średnicy 25 cm

zwiększają odpowiedź wszystkich typów detektorów TL (ostatnia kolumna tabeli 6.3.4). Dają one 25% wzmocnienie sygnału detektorów MCP-6, natomiast dla detektorów MTS-6 to wzmocnienie wynosi ok. 41%. Dla detektorów MCP-N i MTS-N różnica we wzmocnieniu zdeponowanej dawki jest prawie taka sama, odpowiednio 22% i 40%. To daje wzmocnienie sygnału od neutronów termicznych (<sup>6</sup>Li-<sup>7</sup>Li) o 55% i 58% odpowiednio dla detektorów typu MCP i MTS. Moderatory dają też niewielkie wzmocnienie (4%) sygnału obu typów detektorów na bazie <sup>7</sup>Li, co może być spowodowane przez cząstki jonizujące generowane przez neutrony w moderatorach (protony odrzutu).

Nr	Typ TLD	Sygnał	Sygnał	Mod/
pozycji		moderowany	niemoderowany	Niemoa
CS1	MCP-6	318±7	255±1	1,25
CS1	MCP-7	159±1	152±2	1,04
CS1,2,3	MCP-N	236±11	193±7	1,22
CS2	MTS-6	632±10	449±13	1,41
CS2	MTS-7	152±1	146±1	1,04
CS3	MTS-N	428±14	306±11	1,40

Tabela 6.3.4. Wskazanie detektorów TL na polach CS CERF-u [pGy] znormalizowane na jednostkę monitora wiązki [PIC-impuls]. Detektory były kalibrowane w jednostkach kermy w powietrzu na źródle <sup>137</sup>Cs [Obryk2008]

Przeprowadzone testy potwierdziły, że wydajność detekcji neutronów termicznych i epitermicznych jest wyższa dla detektorów MTS niż dla MCP i stabilna dla różnych pól promieniowania dostępnych w czasie eksperymentu. Różne typy detektorów TL użytych do badań wykazały konsystentną wzajemnie odpowiedź i stabilne charakterystyki w różnych polach oraz w szerokim zakresie dawek.

### 6.4. Zastosowanie w polu mieszanym IRRAD6

Metodę UHTR zastosowano do wyników uzyskanych w eksperymencie IRRAD6 w wysokoenergetycznym polu mieszanym (patrz rozdział 4.1.5), celem określenia części sygnału TL od neutronów termicznych i epitermicznych w tym polu. Uzyskane wartości UHTR(250) zostały przedstawione w tabeli 6.4.1.

Pozycja IRRAD6, okres	UHTR(250)					
ekspozycji	MCP-7	MCP-N(P2)	MCP-6			
Pozycja 2, T1	0,028±,005	0,332±,019	0,735±,009			
Pozycja 2, T2	0,031±,004	0,354±,066	0,791±,010			
Pozycja 2, T3	0,035±,004	0,496±,037	0,823±,007			
Pozycja 1, T1	0,057±,003	0,498±,028	0,833±,003			
Pozycja 1, T2	0,078±,007	0,605±,011	0,881±,010			
Pozycja 1, T3	0,120±,012	0,690±,034	0,912±,009			

Tabela 6.4.1. UHTR(250) dla różnych typów detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach w polu mieszanym IRRAD6.

Korzystając z krzywej kalibracyjnej UHTR(250), dla uzyskanych w tym eksperymencie wartości tego współczynnika dla detektorów MCP-N(P2), MCP-7 i MCP-6, można określić udział sygnału neutronowego w stosunku do całkowitego sygnału TL, wyniki przedstawiono na rys. 6.4.1 [Obryk2009a].



Rys. 6.4.1. Współczynnik UHTR(250) w funkcji dawki dla detektorów MCP-N, symbole kolorowe ilustrują wyniki dla pola mieszanego IRRAD6 (niebieskie – MCP-7, czerwone - MCP-N, zielone – MCP-6), symbole czarno-białe to uzyskane wcześniej punkty kalibracyjne dla pól monoenergetycznych (kółka dla elektronów, trójkąty dla protonów).

Wartości dawki uzyskane z UHTR(250) odpowiadające depozycji energii dla różnych typów detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach w polu mieszanym IRRAD6 zostały przedstawione w tabeli 6.4.2. Zaobserwowano około 60% wzrost sygnału w detektorach z litem naturalnym i 70% w tych z <sup>6</sup>Li, względem sygnału otrzymanego dla detektorów zubożonych w <sup>6</sup>Li, dla pozycji 2 pola IRRAD6. Dla pozycji 1 tego pola odpowiednio liczby te wynoszą 50 i 60%. Wyniki te pokazują, że neutrony stanowią główną składową pola mieszanego IRRAD6, sygnał TL w detektorach z LiF pochodzący od neutronów w tym polu, jest dominujący.

Tabela 6.4.2. Wartości sygnału TL, kalibrowane w jednostkach kermy w powietrzu na źródle <sup>137</sup>Cs, uzyskane z UHTR(250), odpowiadające depozycji energii dla różnych typów detektorów LiF:Mg,Cu,P (P2) po naświetlaniach w polu mieszanym IRRAD6.

Pozycja IRRAD6, okres ekspozycji	Sygnał TL, kalibrowany w jednostkach kermy w powietrzu, wyznaczony z UHTR(250) [kGy]		
	MCP-7	MCP-N(P2)	MCP-6
Pozycja 2, T1	0,3±0,1	3,8±0,8	21±4
Pozycja 2, T2	0,4±0,1	4,1±0,8	29±6
Pozycja 2, T3	0,5±0,1	7,5±1,5	36±7
Pozycja 1, T1	0,7±0,1	7,5±1,5	39±8
Pozycja 1, T2	0,9±0,2	11,0±2,2	60±12
Pozycja 1, T3	1,3±0,3	17,0±3,4	79±16

### 6.5. Zastosowanie w eksperymencie COMPASS w CERN

W czerwcu 2009 zestaw 10 kasetek TLD został przekazany grupie z CERN, w celu określenia poziomu dawek wokół wiązki hadronowej w eksperymencie COMPASS (Common Muon and Proton Apparatus for Structure and Spectroscopy [COMPASS]) prowadzonym na akceleratorze SPS. Ekspozycja trwała 5 dni, a kasetki rozmieszczone były na kalorymetrach elektromagnetycznych ECAL1 i ECAL2 (rys. 6.5.1, 6.5.2, 6.5.3.). Przeprowadzone odczyty wykazały dawki wahające się od 7 do 500 mGy (w zależności od odległości od osi wiązki), a więc w zakresie stosunkowo niewysokich dawek (tabele 6.5.1 i 6.5.2). Warto zaznaczyć, że zastosowane równocześnie przez zespół z CERN detektory typu RPL i alanina, ze względu na krótki czas ekspozycji, nie wykazały żadnej dawki.



Rys. 6.5.1. Rozmieszczenie poszczególnych detektorów TL w komorze eksperymentu COMPASS (wg. C. Ilgnera).



Rys. 6.5.2. Rozmieszczenie poszczególnych detektorów TL w komorze ECAL1 COMPASS (wg. C. Ilgnera).


Rys. 6.5.3. Rozmieszczenie poszczególnych detektorów TL w komorze ECAL2 COMPASS (wg. C. Ilgnera).

W tabeli 6.5.1 przedstawiono wyniki pomiaru dawek w komorze eksperymentu COMPASS uzyskane za pomocą detektorów TL w zestawieniu z pozycjami poszczególnych detektorów w komorach ECAL1 i ECAL2. Dla niektórych pozycji pomiarowych detektory MTS-N, zawierające <sup>6</sup>Li wykazały wyższy sygnał niż detektory MCP-7, co wskazuje na udział składowej neutronowej w zaabsorbowanej dawce.

Tabela 6.5.1. Wyniki pomiaru dawek w komorze eksperymentu COMPASS skorelowane z rozmieszczeniem poszczególnych detektorów TL (wg.C. Ilgnera).

ECAL1 Front side

TLD number	Dosimeter number	x / cm	y/cm	Dose-7/mGy	Dose-N/mGy
31722	#3	0	-5	10,8	9,6
31723	#4	0	3	12,4	11,6
31724	#5	-3	0	7,5	7,2
31725	#6	-43	0	3,7	4,0
ECAL2 Front side					
TLD number	Dosimeter number	x / cm	y/cm	Dose-7/mGy	Dose-N/mGy
31721	#2	7	0	57,9	95,5
31726	#7	-19	0	45,5	64,6
31727	#8	-30	0	13,3	28,3
31728	#9	-62	0	5,6	10,2
ECAL 2 Back side					
CONCE DOW SIDE					
TLD number	Dosimeter number	x/cm	v/cm	Dose-7/mGv	Dose-N/mGv
31729	#10	0	0	497.8	466.8
31720	#1	ő	-45	42.2	41.4
0.720		-			

## 6.6. Monitoring dawek promieniowania dla LHC i jego eksperymentów

W 2008 roku dwa z eksperymentów LHC, LHCb i TOTEM, wyraziły chęć wykorzystania opracowanego w ramach pracy zestawu pomiarowego do monitoringu dawek promieniowania. Wiosną 2008 roku, w ramach końcowych przygotowań do uruchomienia LHC, rozmieszczono 33 zestawy "box" w otoczeniu detektora LHCb (rys. 6.6.1) oraz 86 zestawów na kalorymetrach. W eksperymencie TOTEM rozmieszczono 30 zestawów. Ze względu na awarię LHC jaka nastąpiła wkrótce po jego uruchomieniu, odczyty detektorów nie mogły być jeszcze przeprowadzone. Wiosną 2009 detektory zostały wymienione na świeżo wyanilowane. Demontaż i odczyt jest spodziewany na jesieni 2010.



Rys. 6.6.1. Schemat rozmieszczenia zestawów pomiarowych typu 'box' wokół detektora LHCb (miejsca rozmieszczenia zestawów zostały oznaczone kolorem fioletowym) wg D. Wiednera.





B)



C)



D)

Rys. 6.6.2. Zdjęcia pasywnych i aktywnych (otwarty 'box') detektorów rozmieszczonych w komorze eksperymentu LHCb: A) na magnesie spektrometru (M1); B) na trigger trackerze; C) na wzmacniaczu detektora VELO (Vertex Lokator); D) na szczycie szafy z elektroniką (fot. Christoph Ilgner).

W roku 2009 CERN poprosił o dodatkowe 220 zestawów dawkomierzy dla monitorowania w tunelu LHC oraz w komorze eksperymentu ATLAS, a także do monitorowania urządzeń wygaszania wiązki w ślepych odnogach tunelu LHC. Dawkomierze zostały wysłane wiosną 2009 i rozmieszczone zgodnie z przeznaczeniem. Z punktu widzenia opracowanej metody, szczególnie interesujący jest dla autorki monitoring urządzeń wygaszania wiązki, gdzie spodziewane są dawki w najwyższych rejonach zakresu pomiarowego metody. Pomiar pozwoli na oszacowanie pozostałego potencjalnego czasu bezawaryjnej pracy elektroniki, znajdującej się w tych krytycznych miejscach, gdzie narażenie na uszkodzenia radiacyjne jest szczególnie wysokie.

Zapotrzebowanie na monitoring Synchrotronu Protonowego (PS) zostało przedstawione wiosną 2010, dawkomierze zostały dostarczone i rozmieszczone. Równocześnie prowadzone są pomiary dawek, przy użyciu zaproponowanych zestawów TLD, w komorach eksperymentu CNGS (CERN Neutrinos to Gran Sasso [CNGS]), skorelowane z obliczeniami dawek, w miejscach rozmieszczenia TLD, metodami Monte Carlo.

Wszystkie te pomiary potrwają do momentu, kiedy będzie możliwy dostęp do miejsc rozmieszczenia dawkomierzy i ich demontaż. Przerwa eksploatacyjna jest zaplanowana dla LHC na jesieni 2010.

#### 7. Podsumowanie

Dozymetria pól promieniowania wokół akceleratorów w dużych eksperymentach fizycznych jest zagadnieniem złożonym ze względu na bardzo duży zakres mierzonych dawek, sięgający 6-10 rzędów wielkości, i zmienność składu spektralnego promieniowania. Jak dotąd, nie opracowano uniwersalnego dozymetru pasywnego mogącego mierzyć dawki od 1 µGy do 1 MGy.

W ramach niniejszej pracy przeprowadzono systematyczne badania świecenia detektorów termoluminescencyjnych LiF:Mg,Cu,P i LiF:Mg,Ti w polach promieniowania gamma (<sup>60</sup>Co), elektronów, protonów, neutronów i w polach mieszanych w zakresie dawek od kilku Gy do około 1 MGy. Przy zwiększeniu zakresu wygrzewania detektora do 600°C zaobserwowano nową, zależną od dawki, strukturę krzywej temperaturowej detektora LiF:Mg,Cu,P. Dla dawek powyżej 50 kGy opisano pojawienie się piku wysokotemperaturowego (tzw. pik 'B'), którego intensywność i położenie na skali temperatur rosną do około 500 kGy.

Szczegółowe zbadanie emisji wysokotemperaturowej detektora LiF:Mg,Cu,P stało się podstawą realizacji głównego celu pracy, czyli opracowania metody pozwalającej na pomiar dawki w zakresie aż do setek kilogrejów. Została zaproponowana i przetestowana metoda oceny dawki w zakresie powyżej 1 kGy z wykorzystaniem tzw. współczynnika wysoko-temperaturowego.

W końcowej części pracy zaprojektowano zestandaryzowany zestaw pomiarowy TLD przystosowany do realizacji opracowanej metody pomiarowej, oraz w szerszym aspekcie, pasywny zestaw pomiarowy łączący metodę TL z innymi sposobami pomiaru. Zestaw ten znalazł już zastosowanie w monitoringu dawek promieniowania wokół eksperymentów fizycznych w LHC (CERN).

Wyniki przedstawionych w pracy badań zostały już w większej części opublikowane w zagranicznych recenzowanych czasopismach fachowych (m.in. w Radiation Measurements, IEEE Transactions on Nuclear Science, Radiation Protection Dosimetry). Autorka przedstawiła je również na kilku ważnych konferencjach naukowych z tej dziedziny, m.in. na Międzynarodowej Konferencji Dozymetrii Ciała Stałego SSD15 w Delft w 2007 roku, Nuclear Science Symposium w Dreźnie w 2008 i w Orlando w 2009 roku, zostały również przedstawione na międzynarodowych konferencjach LUMDETR2009 w lipcu 2009 w Krakowie oraz IM2010 w marcu 2010 w Atenach. Konferencje te stanowią najpoważniejsze światowe fora prezentacji wyników badań w tej dziedzinie nauk, a nowa metoda wzbudziła ogromne zainteresowanie w środowisku dozymetrycznym, czyniąc 'starą' metodę termoluminescencyjną z powrotem centrum uwagi tego środowiska naukowego.

Tematyka badawcza rozwijana w ramach pracy nad rozprawą będzie nadal kontynuowana. Kolejne pomiary charakterystyki TL dla wysokich dawek promieniowania pozwolą uściślić opracowaną metodę. Prowadzone będą dalsze badania wysokotemperaturowej emisji TL, której nietypowe własności pociągają za sobą interesujące implikacje teoretyczne. Przewiduje się poszerzający się zakres zastosowania opracowanej metody pomiarowej.

Podstawowym wymiernym efektem pracy jest powstanie metody pomiarowej, pozwalającej na określenie dawki promieniowania w zakresie od mikrogreja do setek kilogrejów. Może ona znaleźć wiele zastosowań, została już zastosowana w systemie dozymetrycznym LHC. Autorka referowała wstępne wyniki na posiedzeniu grupy RADMON, odpowiedzialnej za sprawy dozymetryczne LHC, wyniki te spotkały się z dużym zainteresowaniem. Metoda będzie też wykorzystana w pomiarach wokół cyklotronu AIC-144 w IFJ Kraków oraz wokół akceleratorów planowanych w Narodowym Centrum Radioterapii Hadronowej: cyklotronu protonowego 250 MeV i akceleratora protonowo-węglowego (230 MeV/400 MeV). Metoda może być też z powodzeniem stosowana w dozymetrii awaryjnej.

# **Spis literatury**

- [Attix1986]; Attix, F.H., 1986. Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry, John Wiley & Sons, Inc.
- [Bacardit-Corrons2000]; Bacardit-Corrons, I., 2000. Flux measurement of hadrons using activation methods at CERN AD target area and at T7 irradiation facility, Diploma thesis, Universitat Politecnica de Catalunya, Barcelona, Spain.
- [Barthe1993]; J. Barthe, C. Hickman, R. Heindl, and G. Portal, Thermoluminescence Dosimetry at High Temperature and High Doses, Radiat. Prot. Dosim., 1993, 47: 567 569
- [Bernier1997]; Bernier, K., de Rijk, G., Ferioli, G., Hatziangeli, E., Marchionni, A., Palladino, V., Stevenson, G.R., Tabarelli, T., Tsesmelis, E., 1997. Calibration of Secondary Emission Monitors of Absolute Proton Beam Intensity in the CERN SPS North Area, CERN Yellow Report 97-07.
- [Bilski2002]; Bilski, P., 2002. Lithium Fluoride: From Lif:Mg,Ti to LiF:Mg,Cu,P. Radiat. Prot. Dosim. 100, 199-206.
- [Bilski2002a]; Bilski, P., Budzanowski, M., Marczewska, B., Olko, P., 2002. Response of TL dosemeters to cosmic radiation on board passenger aircraft, Radiat. Prot. Dosim. 100, 549-552
- [Bilski2004]; Bilski, P., Budzanowski, M., Olko, P. i Mandowska, E., 2004. LiF:Mg,Ti (MTT) detectors optimised for High-LET radiation dosimetry. Radiat. Meas. 38, 427-430.
- [Bilski2006]; Bilski, P., 2006. Response of various LiF thermoluminescent detectors to high energy ions Results of the ICCHIBAN experiment. Nucl. Instr. Meth. B 251, 121–126.
- [Bilski2007]; Bilski, P., Blomgren, J., d'Errico, F., Esposito, A., Fehrenbacher, G., Fernàndez, F., Fuchs, A., Golnik, N., Lacoste, V., Leuschner, A., Sandri, S., Silari, M., Spurny, F., Wiegel, B. Wright, P., 2007. The problems associated with the monitoring of complex workplace radiation fields at European high-energy accelerators and thermonuclear fusion facilities, Radiat. Prot. Dosim. 126: 491 496
- [Bilski(Obryk)2007]; Bilski, P., Olko, P., Puchalska, M., Obryk, B., Waligórski, M.P.R. i Kim J.L., 2007. High-dose characterization of different LiF phosphors. Radiat. Meas. 42, 582-585.
- [Bilski,Obryk2008]; Bilski, P., Obryk, B., Olko, B., Mandowska, E., Mandowski, A. i Kim, J.L., 2008. Characteristics of LiF: Mg,Cu,P thermoluminescence at ultra-high dose range. Radiation Measurements. 43, 315-318.
- [Bilski,Obryk2010]; Bilski, P., Obryk, B., Stuglik, Z., 2010. Behaviour of LiF:Mg,Cu,P and LiF:Mg,Ti thermoluminescent detectors for electron doses up to 1 MGy. Radiat. Meas., in print. doi:10.1016/j.radmeas.2009.11.046
- [Boyle1663]; Boyle R, 1663. Register of the Royal Society, 213.
- [Bos1993]; Bos, A.J.J., Piters, T.M., Gómez Ros, J.M. i Delgado, A., 1993. An Intercomparison of Glow Curve Analysis Computer Programs: I. Synthetic Glow Curves, Radiat. Prot. Dosim. 47, 473–477.
- [Bos1994]; Bos, A.J.J., Piters, T.M., Gómez Ros, J.M. i Delgado, A., 1994. An Intercomparison of Glow Curve Analysis Computer Programs: II. Measured Glow Curves, Radiat. Prot. Dosim. 51, 257–264.
- [Bos2007]; Bos, A.J.J., 2007. Theory of thermoluminescence, Radiat. Meas. 41, S45–S56.
- [Brandt1998]; Brandt, S., Analiza danych, Wydawnictwo Naukowe PWN, 1998.
- [Cameron1968]; Cameron, J.R., Suntharalingam, N., Kenney, G.N., 1968. Thermoluminescent Dosimetry, The University of Wisconsin Press.
- [Brugger2005]; Brugger, M., Roesler, S., 2005. Remanent Dose Rates around the Collimators of the LHC Beam Cleaning Insertions, Radiat Prot Dosimetry 115: 470–474.
- [Budzanowski1996]; Budzanowski, M., Bilski, P., Bøtter-Jensen, L., Delgado, A., Olko, P., Sáez-Vergara, J.C., Waligórski, M.P.R., 1996. Comparison of LiF:Mg,Cu,P. (MCP-N,

GR-200A) and Alpha-Al<sub>2</sub>0<sub>3</sub>:C TL Detectors in Short-Term Measurements of Natural Radiation, Radiat Prot Dosim 66, 157–160.

- [CERNIrradiationWebsite]; CERN irradiation facilities (East Hall), https://irradiation.web.cern.ch/irradiation/InfoDose.asp
- [Chen1976]; Chen, R., 1976. Methods for kinetic analysis of thermally stimulated processes, Journal of Materials Science, Vol. 11, No. 8, 1521 – 1541.
- [Chen1981]; Chen, R., Kirsh, Y., Analysis of Thermally Stimulated Processes, Pergamon Press, Oxford, 1981.
- [Chen1984]; Chen, R., 1984. In: Horowitz, Y.S. (Ed.), Thermoluminescence and Thermoluminescent Dosimetry, Vol. 1, CRC Press, Boca Raton, FL, p. 81.
- [Chen1997]; Chen, R. i McKeever, S.W.S. Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 1997.
- [CNGS]; http://proj-cngs.web.cern.ch/proj-cngs/
- [COMPASS]; http://www.compass.cern.ch/
- [Delgado2001]; Delgado, A. i Gómez Ros, J.M., 2001. Computerised Glow Curve Analysis: A Tool for Routine Thermoluminescence Dosimetry. Radiat. Prot. Dosim. 96, 127-132.
- [Encyklopedia1972]; Praca zbiorowa, 1972. Encyklopedia fizyki, Państwowe Wydawnictwo Naukowe.
- [Fasso2003]; Fassò, A., Ferrari, A., Roesler, S, Sala, P.R., Battistoni, G., Cerrutti, F., Gadioli, E., Garzelli, M.V., Ballarini, F., Ottolenghi, A., Empl, A., Ranft, J., 2003. The physics models of FLUKA: status and recent developments, Computing in High Energy and Nuclear Physics 2003 Conference (CHEP2003), La Jolla, CA, USA, March 24-28, 2003, (paper MOMT005), eConf C0303241 (2003), arXiv:hep-ph/0306267
- [Fasso2005]; Fassò, A., Ferrari, A., Ranft, J., Sala, P.R., 2005. FLUKA: a multi-particle transport code, CERN-2005-10 (2005), INFN/TC 05/11, SLAC-R-773.
- [Fuerstner2005]; Fuerstner, M., Forkel-Wirth, D., Vincke, H., Mayer, S., Brunner, I., Floret, I., 2005. High-Level Dosimetry systems used at CERN, 4th LHC RADIATION WORKSHOP, <u>http://indico.cern.ch/getFile.py/access?contribId=s10t1&sessionId=9&resId=3&materia</u> <u>lId=0&confId=a044378</u>
- [Furetta1998]; Furetta C., Weng P.S., 1998. Operational Thermoluminescence Dosimetry World Scientific Publishing. Co.Pte.Ltd, Singapur.
- [Furgeri2004]; Furgeri, A.J.; de Boer, W.; Hartmann, F.; Freudenstein, S.; Assouak, S.; Forton, E.; 2004. Radiation Damage Effects on CMS Sensors Quality Assurance and Irradiation Tests, IEEE Transactions on Nuclear Science 51/6, 3063-3068.
- [Golnik1999]; Golnik, N., Silari, M., Otto, T., 1999. On the Use of a Recombination Chamber for Radiation Measurements in CERN-EU High Energy Reference Fields, Radiat Prot Dosimetry 86, 175–179.
- [Glaser1999]; Glaser, M., Durieu, L., Lemeilleur, F., Tavlet, M., Leroy, C., Roy, P., 1999. New irradiation zones at the CERN-PS. Nucl. Instr. & Meth. in Physics Research A 426, 72-77.
- [Glaser2000]; Glaser, M., Lemeilleur, F., Tavlet, M., 2000. Radiation test Facilities in the New PS East Hall at CERN. IEEE Trans. Nucl. Sci. 44, 136-141.
- [Glaser2006]; Glaser, M., Ravotti, F., Moll, M., 2006. Dosimetry assessments in the irradiation facilities at the CERN-PS accelerator. IEEE Trans. Nucl. Sci. 53 (4), 2016-2022.
- [Halperin1960]; Halperin, A. i Braner, A.A., 1960. Evaluation of Thermal Activation Energies from Glow Curves, Phys. Rev. 117, 408-415.
- [Horowitz1993]; Horowitz, Y.S. 1993. LiF:Mg,Ti versus LiF:Mg,Cu,P: the competition heats up. Radiat. Prot. Dosim. 47, 135-141.
- [Horowitz1995]; Horowitz, Y.S., Yossian, D., 1995. Computerised Glow Curve Deconvolution: Application to Thermoluminescence Dosimetry, Rad. Prot. Dosim. 60, 1-114.

- [Horowitz2006]; Horowitz, Y.S., Belaish, Y., Oster, L., 2006. Theories of TL systems: failures, successes, conflicts, trends: insights into possible future materials and techniques. Radiat. Prot. Dosim. 119, 124–129.
- [Hrynkiewicz2001]; Hrynkiewicz, A.Z. i inni, 2001. Człowiek i promieniowanie jonizujące. Wydawnictwo Naukowe PWN, 70-128.
- [Huhtinen2003]; Huhtinen, M., 2003. Proposal for a Radiation Monitoring System presented at the 3rd CMS Radiation Monitoring Meeting, May 2003.
- [IAEA1999]; IAEA-TECDOC-1070, 1999. Techniques for high dose dosimetry in industry, agriculture and medicine, Proceedings of a Symposium, Vienna, 2-5 November, 1998; International Atomic Energy Agency, Vienna, March 1999, ISSN-1011-4289.
- [Ilgner2006]; Ilgner, C., 2006. Passive Dosimeter Application in the CERN LHC, tekst niepublikowany.
- [Ilgner2007]; Ilgner, C., 2007. Passive sensor housing, seminarium RADMON (Radiation Monitoring Working Group at CERN), <u>http://indico.cern.ch/conferenceDisplay.py?confId=12735</u>

[ITER]; http://www.iter.org/

[KAERI]; http://www.kaeri.re.kr/english/sub/sub03\_04\_01\_06.jsp

- [Kitis1998]; Kitis, G., Gomez-Ros, J.M., Tuyn, J.W.N., 1998. Thermoluminescence glow-curve deconvolution functions for first, second and general orders of kinetics, J. Phys. D 31 (19), 2636 2641.
- [Kitis,Obryk2009]; Kitis, G., Obryk, B., 2009. Wyniki niepublikowane.
- [Land1969]; Land, P.L., 1969. Equations for thermoluminescence and thermally stimulated current as derived from simple models, J. Phys. Chem. Solids 30, 1693-1708.
- [Laub1999]; Laub, W.U., Kaulich, T.W., Nusslin, F., 1999. A Diamond Detector in the Dosimetry of High-Energy Electron and Photon Beams, Phys Med Biol. 44(9), 2183-2192.
- [Leroy1998]; Leroy, C., Roy, P., 1998. Calculation of particle fluxes in the PS silicon proton irradiation zone, UdeM-GPP-EXP-98-03 and following updates.
- [LHC]; http://www.cern.ch
- [Mandowska2004]; Mandowska, E., Mandowski, A., Świątek, J., 2004. Ultraweak spectrally resolved thermoluminescence in polymers, Macromolecular Symposia 212, 251-256.
- [Mandowska(Obryk)2010]; Mandowska, E., Bilski, P., Obryk, B., Kim, J.I., Olko, P., Mandowski, A., 2010. Spectrally resolved thermoluminescence of highly irradiated LiF:Mg,Cu,P detectors. Radiat. Meas., in print. doi:10.1016/j.radmeas.2009.11.016
- [Mandowski2005]; Mandowski, A., 2005. Semi-localized transitions model for thermoluminescence, J. Phys. D: Appl. Phys. 38,17-21.
- [Mandowski2006]; Mandowski, A., 2006. Topology-dependent thermoluminescence kinetics, Radiat. Prot. Dosim. 119, 23–28.
- [McKeever1985]; McKeever, S.W.S., 1985. Thermoluminescence of solids. Cambridge University Press.
- [McKeever1991]; McKeever, S.W.S., 1991. Measurements of emission spectra during thermoluminescence (TL) from LiF(Mg, Cu, P) TL dosimeters, J. Phys. D: Appl. Phys. 24, 988-992.
- [McKeever1995]; McKeever, S.W.S., Moscovitch, M., Townsend, P.D., 1985. Thermoluminescence dosimetry materials: properties and uses, Nuclear Technology Publishing.
- [McKeever2006]; McKeever, S., 2006. Passive Space Radiation Dosimetry using Optically and Thermally Stimulated Luminescence. Materiały konferencyjne WRMISS, Oxford Univ.
- [McKinlay1981]; McKinlay, A.F., 1981. Thermoluminescence dosimetry, Medical Physics Handbook 5, Adam Hilger Ltd.
- [McLaughlin1995]; McLaughlin, W.L., Desrosiers, M.P., 1995. Dosimetry Systems for Radiation Processing, Radiat. Phys. Chem. 46(4-6), 1363-1374.

- [McLaughlin1999]; McLaughlin, W.L., 1999. Radiation Processing Dosimetry Past, Present and Future, Proceedings of a Symposium, Vienna, 2-5 November, 1998; IAEA, Vienna, March 1999, ISSN-1011-4289.
- [Meijvogel1995]; Meijvogel, K., Bos, A.J.J., 1995. Influence of thermal treatment on glow curve and thermoluminescence emission spectra of LiF:Mg,Cu,P, Radiat. Meas. 24, 239-247.
- [MINUIT]; James, F., Roos, M., 1975. Minuit: A System for Function Minimization and Analysis of the Parameter Errors and Correlations, CERN program library entry D506, CERN-DD-75-20, Jul 1975. 38pp., published in Comput. Phys. Commun. 10 (1975), 343 – 367, http://consult.cern.ch/writeups/minuit
- [Mitaroff2002]; Mitaroff, A. i Silari, M., 2002. The CERN-EU High-Energy Reference Field (CERF) Facility for Dosimetry at Commercial Flight Altitudes and in Space, Radiat. Prot. Dosim., 102, 7–22.
- [Moskovitch1999]; Moskovitch, M., 1999. Personnel Dosimetry Using LiF:Mg,Cu,P, Radiat Prot Dosimetry 85, 49-56.
- [Moskovitch2007]; Moskovitch, M., Horowitz, Y.S., 2007. Thermoluminescent materials for medical applications: LiF:Mg,Ti and LiF:Mg,Cu,P, Radiat. Meas. 41, S71-S77.
- [Nakajima1978]; Nakajima, T., Murayama, Y., Matsuzawa, T. i Koyano, A., 1978. Development of a Highly Sensitive LiF Thermoluminescence Dosimeter and its Applications. Nucl. Instr. Meth. 157, 155-162.
- [Monteño-Garcia2006]; Monteño-Garcia, C., Gamboa-deBuen, I., 2006. Measurements of the Optical Density and Termoluminescent Response of LiF:Mg,Ti Exposed to High Doses of <sup>60</sup>Co Gamma Rays, Radiat. Prot. Dosim. 119, 230–232.
- [Niewiadomski1991]; Niewiadomski, T., 1991. Dozymetria termoluminescencyjna w praktyce. Raport IFJ nr 1550/D.
- [Niewiadomski1994]; Niewiadomski, T., 1994. 25 years of thermoluminescence dosimetry at IFJ, Radiat. Prot. Dosim. 85, 269-272.
- [NISTdata]; PSTAR: Stopping Power and Range Tables for Protons, (http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/PSTAR.html
- [Obryk&Bilski2007]; Obryk, B., Bilski, P., 2007. Thermoluminescent dosimetry service at the IFJ Krakow, seminarium RADMON (Radiation Monitoring Working Group at CERN), http://indico.cern.ch/conferenceDisplay.py?confId=12735
- [Obryk2008]; Obryk, B., Bilski, P., Budzanowski, M., Fuerstner, M., Ilgner, C., Jacquenod, F., Olko, P., Puchalska, M., Vincke, H., 2008. The response of different types of TL lithium fluoride detectors to high-energy mixed radiation fields. Radiat. Meas. 43, 1144-1148.
- [Obryk2008a]; Obryk, B., Bilski, P., Budzanowski, M., Fuerstner, M., Ilgner, C., Olko, P., Pajor, A., Puchalska M., Vincke, H., 2008. Measurements of environmental doses of complex radiation at high-energy accelerators and thermonuclear fusion facilities, Materials of 14th International Conference of Women Engineers and Scientists, Lille, July 15-18, 2008.
- [Obryk2008b]; Obryk, B., Bilski, P., Budzanowski, M., Fuerstner, M., Glaser, M., Ilgner, C., Olko, P., Pajor, A., Stuglik, Z., 2008. Development of a method of passive measurement of radiation doses at ultra-high dose range. Nuclear Science Symposium Conference Record, 2008. NSS '08. IEEE, 19-25 Oct. 2008, 989-993.
- [Obryk2009]; Obryk, B., Bilski, P., Budzanowski, M., Fuerstner, M., Glaser, M., Ilgner, C., Olko, P., Pajor, A., Stuglik, Z., 2009. Development of a method for passive measurement of radiation doses at ultra-high dose range. IEEE Trans. Nucl. Sci. 56, No. 6, 3759-3763.
- [Obryk2009a]; Obryk, B., Bilski, P., Budzanowski, M., Glaser, M., Fuerstner, M., Ilgner, C., Olko, P., 2009. Behaviour of various types of LiF detectors at high-energy mixed fields, Presentation given at 2009 Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC), Orlando, October 25-31, 2009.

- [Obryk2010]; Obryk, B., Bilski, P., Glaser, M., Fuerstner, M., Budzanowski, M., Olko, P., Pajor, A., 2010. The response of TL lithium fluoride detectors to 24 GeV/c protons for doses ranging up to 1 MGy, Radiat. Meas. in print. doi:10.1016/j.radmeas.2009.12.041
- [Obryk2010sub]; Obryk, B., Bilski, P., Olko, P., 2011?. Method of thermoluminescent measurement of radiation doses from micrograys up to a megagray with a single LiF:Mg,Cu,P detector, złożone do Radiat. Prot. Dosim., aktualnie w recenzji.
- [Olko2002]; Olko, P., Bilski, P., Budzanowski, M., Waligórski, M.P.R., Reitz, G., 2002. Modeling the response of thermoluminescence detectors exposed to low- and high-LET radiation fields. J. Radiat. Res. 43, S59–S62.
- [Olko2004]; Olko, P., 2004. Microdosimetric modeling of the relative efficiency of thermoluminescent materials. Radiat. Meas. 38, 781–786.
- [Olko2006]; Olko, P., Bilski, P., El-Faramawy, N.A., Goksu, H.Y., Kim, Y.L., Kopec, R., Waligorski, M.P.R., 2006. On the Relationship Between Dose-, Energy- and LET-response of Thermoluminescence Detectors, Radiat. Prot. Dosimetry 119, 15-22.
- [Peimel-Stuglik2008]; Peimel-Stuglik, Z., Fabisiak, S., 2008. A comparison of the performance characteristic of four film dosimeters in a 10-MeV electron beam. Applied Radiation and Isotopes 66, 346-352.
- [Perry1987]; Perry, J.A., 1987. RPL Dosimetry, Radioluminescence in Health Physics, IOP Publishing Ltd.
- [Pivovarov1999]; Pivovarov, S.P., Rukhin, A.B., Vasilevskaya, L.A., Seredavina, T.A., Zhakparov, R., Bakhtigereeva, A., 1999. Some Peculiarities and Complications in High-Dose ESR-dosimetry, Proceedings of an IAEA symposium "Techniques for High Dose Dosimetry in Industry, Agriculture and Medicine", Vienna 1999, IAEA-TECDOC-1070.
- [Plotter2.0]; <u>http://atom.kaeri.re.kr/cgi-bin/endfplot.pl</u>
- [Prokić2001] M.Prokić, Lithium Borate Solid TL Detectors, Radiation Measurements, 2001; 33: 393-396
- [Puchalska2006]; Puchalska, M., Bilski, P., 2006. GlowFit-a New Tool for Thermoluminescence GlowCurve, Radiation Measurements 41, 659-664.
- [Puchalska2008]; Puchalska, M., 2008. Ocena narażenia astronautów przebywających w otwartej przestrzeni kosmicznej na promieniowanie kosmiczne, Rozprawa doktorska, <u>http://www.ifj.edu.pl/SD/rozprawy\_dr/rozpr\_Puchalska.pdf?lang=pl</u>.
- [Puchalska2008a]; Puchalska, M., Bilski, P., 2008. An improved method of estimating ionisation density using TLDs, Radiat. Meas. 43, 679-682.
- [Randall1945a]; Randall, J.T. i Wilkins, M.H.F., 1945. Phosphorescence and Electron Traps. I. The Study of Trap Distributions. Proc. R. Soc. A 184, 366-389.
- [Randall1945b]; Randall, J.T. i Wilkins, M.H.F., 1945. Phosphorescence and Electron Traps. II. The Interpretation of Long Period Phosphorescence. Proc. R. Soc. A 184, 390-407.
- [Ravnik2003]; Ravnik M., Jeraj, R., 2003. Research reactor benchmarks, Nucl. Sci. Eng. 145, 145–152.
- [Ravotti2006]; Ravotti, F., 2006. Development and Characterization of Radiation of Radiation Monitoring Sensors for the High Energy Physics Experiments of the CERN LHC Accelerator, Rozprawa doktorska, Université Montpellier II.
- [Ravotti2007]; Ravotti, F., Glaser, M., Rosenfeld, A.B., Lerch, M.L.F., Holmes-Siedle, A.G., Sarrabayrouse, G, 2007. Radiation Monitoring in Mixed Environments at CERN: From the IRRAD6 Facility to the LHC Experiments. IEEE Trans. Nucl. Sci. 54 (4), 1170-1177.
- [Regulla1982]; Regulla, D.F., Deffner, U., 1982. Dosimetry by EPR Spectroscopy of Alanine, Appl. Radiat. Isot. 33, 1101-1114.
- [Regulla1999]; Regulla, D.F., 1999. EPR Dosimetry Present and Future, Proceedings of an IAEA symposium "Techniques for High Dosimetry in Industry, Agriculture and Medicine", Vienna 1999, IAEA-TECDOC-1070.

- [Schmitz1985]; Schmitz, Th., Morstin, K., Muller, K.D., Booz, J., 1985. Construction and First Application of a TEPC Dose-equivalent Meter for Area Monitoring, Rad. Prot. Dosim. 13, 335-339.
- [Silari2001]; Silari, M., Stevenson, G.R., 2001. Radiation Protection at High Energy Proton Accelerators, Rad. Prot. Dosim. 96, 311-321.
- [Silari2005]; Silari, M., Passive Dosimeters in the LHC, 5th LHC RADIATION WORKSHOP, http://indico.cern.ch/conferenceDisplay.py?confId=a056455
- [SilariEditor2006]; P.Bilski, J.Blomgren, F. d'Errico, A. Esposito, G.Fehrenbacher, F. Fernàndez, A. Fuchs, N. Golnik, V. Lacoste, A. Leuschner, S. Sandri, M. Silari (Editor), F. Spurny, B. Wiegel, P. Wright, 2006. Complex Workplace Radiation Fields at European High-Energy Accelerators and Thermonuclear Fusion Facilities, European Organization for Nuclear Research, CERN 2006-007
- [Skłodowska1904]; Skłodowska-Curie, M., 1904. Discoverer of Radium, Century Magazine, 461-466.
- [SRIM2010]; SRIM The Stopping and Range of Ions in Matter, SRIM.EXE, (C) 1984-2010, James F. Ziegler, http://www.srim.org/SRIM/SRIMLEGL.htm
- [Sullivan1992]; Sullivan, A.H., 1992. A Guide to Radiation and radioactivity Levels Near Highenergy Particle Accelerators, Nuclear Technology Publishing, London, UK, ISBN 1-870965-18-3.
- [Vaijapurkar1998]; Vaijapurkar, S.G., Raman, R., Bhatnagar, P.K., 1998. Sand a High Gamma Dose Thermoluminescence Dosimeter, Radiation Measurements 29, 223-226.
- [Vincke2007]; Vincke, H., Brunner, I., Floret, I., Forkel-Wirth, D., Fuerstner, M., Mayer, S., Theis, C., 2007. Response of Alanine and Radio-Photo-Luminescence dosemeters to mixed high-energy radiation fields, Radiat. Prot. Dosim. 125(1-4), 340-344.
- [Vollaire2005]; Vollaire, J., Brugger, M., Forkel-Wirth, D., Roesler, S., Vojtyla, P., 2005. Calculation of Water Activation for the LHC, 7th International Topical Meeting on Nuclear Applications of Accelerator Technology (AccApp05), Proc. AccApp05, Venice 2005.
- [Vollaire2006]; Vollaire, J., Brugger, M., Forkel-Wirth, D., Roesler, S., Vojtyla, P., 2006. Calculation of water activation for the LHC, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 562 (2), 976-980.
- [Waligórski1980]; Waligórski, M.P.R., Katz, R., 1980. Supralinearity of peak 5 and 6 in TLD-700. Nucl. Instrum. Meth. B 175, 48–50.
- [Wijnands2003]; Wijnands, T., 2003. Electronics and Their Radiation Tolerance for the Control of the LHC Machine, 9th Workshop on Electronics for LHC Experiments, Amsterdam 2003.

[Wikipedia]; http://www.wikipedia.org/

- [Wrzesińska1974]; Wrzesińska A.A., 1974. Fotoluminofory i elektroluminofory krystaliczne. Wydawnictwo Naukowe PWN.
- [Zielczyński2004]; Zielczyński, M., 2004. A New Approach to the Dosimetry of Mixed Radiation Using a Recombination Chamber, Rad. Prot. Dosim. 110, 267-271.

## **DODATEK A: Zabarwianie detektorów**

Autorka zaobserwowała efekt zabarwiania detektorów TL na bazie fluorku litu poddanych ekspozycji na wysokie dawki promieniowania. Przy dawkach ok. dziesięciu kGy detektory zaczynały podlegać stopniowemu żółknięciu, w miarę jak dawka rosła kolor ciemniał, dochodząc aż do ciemnego brązu dla dawek dochodzących do 1 MGy. Proces ten autorka zaobserwowała we wszystkich eksperymentach przeprowadzonych w ramach pracy, został on zilustrowany na rysunkach A.1 –A.7.



Rys. A.1. Fotografia ilustrująca zabarwienie detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach <sup>60</sup>Co dla zakresu dawek 0,5 kGy-500 kGy.







Rys. A.3. Fotografia ilustrująca zabarwienie detektorów LiF:Mg,Cu,P po naświetlaniach elektronami o energii 10 MeV dla zakresu dawek 75 kGy-1000 kGy.



Rys. A.4. Fotografia ilustrująca zabarwienie różnych typów detektorów na bazie fluorku litu po naświetlaniach protonami o energii 24 GeV/c dla zakresu dawek 10 Gy-1000 kGy.



Rys. A.5. Fotografia ilustrująca zabarwienie różnych typów detektorów na bazie fluorku litu po naświetlaniach w pozycji P1 wysokoenergetycznego pola mieszanego IRRAD6 dla zakresu dawek ok. 0.9 kGy - 4.1 kGy.



Rys. A.6. Fotografia ilustrująca zabarwienie różnych typów detektorów MCP po naświetlaniach w wysokoenergetycznym polu mieszanym IRRAD6 dla zakresu dawek ok. 0,9 kGy – 4,1 kGy (czasy ekspozycji T1 - T3, patrz rozdział 4.1.5) w pozycjach P1 i P2 tego pola.



Rys. A.7. Fotografia ilustrująca zabarwienie różnych typów detektorów MCP i MTS po naświetlaniach strumieniem neutronów termicznych i epitermicznych w reaktorze TRIGA Mark II dla fluencji neutronów w zakresie  $3x10^{11} - 3x10^{15}$  n/cm<sup>2</sup> (próbki S1-S9).

Zjawisko to polega na tworzeniu się pod wpływem promieniowania centrów barwnych. Centra barwne (tzw. centra F) są to wakancje (dziury) anionowe z przechwyconym jednym lub dwoma elektronami. Centra te samodzielnie lub w aglomeracji z innymi defektami stanowią centra luminescencji w wielu materiałach TL [McKeever1985, Niewiadomski1991].

Jednocześnie po odczycie polegającym na rezystorowym podgrzewaniu detektorów do temperatury ok. 600°C, wszystkie detektory odzyskiwały swoją naturalną barwę (rys. A.8). Dzieje się tak, ponieważ podczas wygrzewania centra F mogą anihilować z centrami H (halogen w położeniach międzywęzłowych, w przypadku fluorku litu jest nim fluor), usuwając w ten sposób defekt sieci [McKeever1985].

#### Po odczycie



#### Przed odczytem

Rys. A.8. Fotografia ilustrująca odzyskiwanie naturalnego koloru w procesie odczytu, przez detektory LiF:Mg,Cu,P naświetlone uprzednio protonami o energii 24 GeV/c.

Innym efektem towarzyszącym ekspozycji na wysokie dawki promieniowania było zabarwianie pojemników na detektory, zarówno tych wykonanych z przeźroczystego PMMA, jak i z polietylenu, jak np. widoczne na rys. 6.1.1. w rozdziale 6.1 pokrywki pojemników na detektory.