

SZABÓ P.P.  
PÁLFALVI J.

TERMOLUMINESZCENS DETEKTOROK GYORS-  
NEUTRON ÉRZÉKENYSÉGÉNEK VIZSGÁLATA

*Hungarian Academy of Sciences*

**CENTRAL  
RESEARCH  
INSTITUTE FOR  
PHYSICS**

**BUDAPEST**

KFKI-1984-36

TERMOLUMINESZCENS DETEKTOROK GYORS-  
NEUTRON ÉRZÉKENYSÉGÉNEK VIZSGÁLATA

SZABÓ P.P., PÁLFALVI J.  
Központi Fizikai Kutató Intézet  
1525 Budapest 114, Pf.49

HU ISSN 0368 5330  
ISBN 963 372 203 0

## KIVONAT

Megvizsgáltuk néhány termolumineszcens detektor 14,7 MeV-es gyorsneutronokkal szembeni érzékenységét. A vizsgált TL detektorok a következők voltak: az intézetünkben személyi dozimetriai célokra alkalmazott MTS-N típusu, lengyel gyártmányu LiF tabletta, a baleseti dozimetriai célokra használt  $^7\text{LiF}$  por, valamint a környezetellenőrzésben és az űrdozimetriai méréseknél használt hazai előállítású  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  és  $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$  por. Szabad levegő geometriájú, valamint fantomos neutronbesugárzásokat hajtottunk végre. A kapott eredményeket korábbi számított és mért eredményekkel hasonlítottuk össze.

## АННОТАЦИЯ

Исследовалась чувствительность нескольких типов термолуминесцентных детекторов к быстрым нейтронам 14,7 МэВ. Были исследованы следующие типы детекторов: таблетка LiF типа MTS-N, польского производства, используемая в нашем институте в целях индивидуальной дозиметрии, порошок  $^7\text{LiF}$ , используемый для аварийной дозиметрии, а также порошки  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  и  $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$  отечественного производства, используемые для контроля окружающей среды и дозиметрических измерений в космосе. Проводились нейтронные облучения в свободном пространстве и на фантоме. Полученные результаты сравнивались с ранее вычисленными и измеренными результатами.

## ABSTRACT

Fast neutron (14.7 MeV) sensitivities of several thermoluminescent detectors were determined. The investigated detectors were: MTS-N type pellets (product of Poland) used routinely in our institute for personal dosimetry,  $^7\text{LiF}$  powder used for accident dosimetry, as well as  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  and  $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$  powders (made in Hungary) used for environmental monitoring and space dosimetry purposes. Both free-in-air and on-phantom irradiations were performed. The new results are compared with responses calculated and measured earlier.

## Bevezetés

Az ebben a jelentésben leírt munka közvetlen folytatása a korábbi vizsgálatainknak [1, 2], amikor különböző TL detektorok neutronérzékenységét vizsgáltuk, termikus, 2 keV, 24 keV és 144 keV energiájú neutronokkal, most pedig a 14 MeV energiájú neutronokkal végzett TL érzékenység méréseinket ismertetjük. A 14 MeV-es neutronbesugárzásokat a debreceni ATOMKI neutrongenerátoránál végeztük. A vizsgált TL detektorok - hasonlóan a korábbiakhoz a következők voltak: a KFKI-ban és a PAV-nál a személyi dózismérőkben alkalmazott LiF tabletták /MTS-N típusu, lengyel gyártmányu/, a KFKI baleseti dózismérőjében alkalmazott  $^7\text{LiF}$  por /TLD-700, Harshaw gyártmány/, valamint a környezeti és ürdozimetriai célokra használt hazai gyártmányu  $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$  és  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  por.

A termolumineszcens detektorok gyorsneutron érzékenysége általában alacsony. Többféle módszerrel próbálják az érzékenységet növelni - vagy protonmeglökésen alapuló radiátor alkalmazásával [3], vagy pedig aktivációs módszer segítségével: a neutronok által létrehozott magreakciók önbesugárzásának felhasználásával [4], vagy pedig a neutronok termalizációja segítségével, ez utóbbi megoldás általában nem alkalmazható a személyi dozimetriában, mert így a dózismérő terjedelmessé válik. Ezenkívül alkalmaznak még - hasonlóan a nyomdetektorokhoz - hasadási fóliákat:  $^{238}\text{U}$  és  $^{237}\text{Np}$ -t, ahol a TL jelzést főleg a hasadási termékek hozzák létre [5].

Hátránya ennek a megoldásnak a  $^{237}\text{Np}$  és  $^{238}\text{U}$  spontán hasadása, ami a mérést zavarja.

A személyi dózismérőket a gyorsneutronoktól leárnyékolni gyakorlatilag nem lehet, így zavaró hatásukat - amivel a gamma dózis meghatározását zavarják - figyelembe kell venni, a neutrondetektorok jelzése alapján. Ehhez előbb meg kell állapítani az egyes TL detektorok gyorsneutron érzékenységet, valamint figyelembe kell venni még azt a tényt is, hogy a testről a gyorsneutronok egy hányada - 14,7 MeV-es neutronoknál a neutronok mintegy 10 %-a - visszaverődik, és így a személyi dózismérőt ért látszólagos gyorsneutron fluens nagyobb, mint ha csak szabad levegős neutron besugárzás lenne (1. ábra).

#### Neutron besugárzások

A gyorsneutron besugárzásokat a debreceni ATOMKI 14,7 MeV-es neutrongenerátoránál végeztük. A besugárzási elrendezést mutatja a 2. ábra. A neutronbesugárzásoknál mind szabad levegős /fantom nélküli/, mind pedig fantomos neutron besugárzásokat is végeztünk. A fantom nélküli esetben a termolumineszcens detektorok gyorsneutronérzékenységét lehetett megállapítani, amíg a fantomra helyezett TLD-k esetében a gyakorlati dózismérési viszonyokhoz járunk közelebb - hiszen a dózismérőket általában az emberek a testükre helyezve viselik - az elől lévő TLD azt az esetet jellemzi, amikor a dolgozót a neutronsugárzás szemből éri, amíg a fantom hátoldalán lévő TLD arra az esetre jellemző, amikor a dolgozót a neutronsugárzás hátulról éri.

A neutrongenerátorban a forgó target átmérője 3,5 cm, az ionnyaláb átmérője pedig 0,5 cm volt. A fantomot az épület falától 1,5 m-nél messzebbre helyezük el, így a szórt neutronok zavaró hatásától eltekinthettünk. A fantomot a targettól 20, illetve 50 cm távolságban helyeztük el. A vízzel feltöltött fantom kistengelye 21,5 cm, nagytengelye 29 cm, magassága 60 cm volt, és a target a fantom félmagasságában, a kistengellyel egyvonalban helyezkedett el. A neutronbesugárzásoknál a fluens és a spektrum mérését nyomdetektorokkal, valamint aktivációs Au és S detektorok segítségével végeztük, amelyek leírását részletesen a 7.1.8. számú OKKFT jelentés tartalmazza [6]. A neutronfluens meghatározásának mérési összbizonytalansága 6-10 %- volt.

Az I. táblázat tartalmazza a mért neutronfluens adatokat és a besugárzási körülményeket.

#### TL detektorok és kiértékelésük

A gyorsneutron vizsgálatoknál alkalmazott TL detektorokat az ujrafelhasználásuk előtti hőkezelési eljárásokat, kiértékelési paramétereket a II. táblázatban láthatjuk.

A kiértékelés előtt semmilyen más hőkezelést nem alkalmaztunk; a felejtés kiküszöbölése érdekében a TL detektorokból kilépő fény mennyiségének mérését akkor kezdtük el, amikor a TLD mérőkészülék fűtőtáblájának a hőmérséklete elérte a 160 °C-ot. A TL méréseket egy NHZ-204 típusu TLD mérőkészüléken végeztük, 1 l.min<sup>-1</sup> áramlási sebességű nitrogén atmoszférában. A kalibrációs besugárzásokat <sup>60</sup>Co gamma forrás kollimált nyalábjában végeztük el.

## Eredmények és diszkusszió

### 1./ Szabad levegő geometriájú besugárzás

A III. táblázat tartalmazza a gyorsneutron érzékenységre vonatkozó mérési eredményeket, a szabad levegő geometriájú - fantom nélküli esetre vonatkozóan. Itt a termikus neutronok fluense a kimutatási határnál -  $10^6 \text{ n.cm}^{-2}$  - kisebb volt. A gyorsneutron érzékenység megállapításánál emiatt a termikus neutronokat nem vettük figyelembe. Megjegyezzük, hogy a neutrongenerátor közelében kialakult gamma sugárzási teret sem vettük figyelembe, mivel nem végeztünk ilyen méréseket, emiatt az itt közölt neutronérzékenységi adatok egy felső korlátját jelentik a neutron érzékenységi adatoknak.

A III. táblázat adatain látható, hogy a gyorsneutron érzékenységek - a LiF-7 TL detektort kivéve - mind a két neutronbesugárzás esetén egymáshoz közel esnek. A 3. ábra mutatja a  $^7\text{LiF}$ -re és a LiF tablettára vonatkozó mérési eredményeink egyezését a korábbi mérési és számított eredményekkel.

Az egyezés jónak tekinthető. Az ábrán szintén feltüntettük a korábbi OKKFT jelentésben már közölt alacsonyabb energiájú neutronérzékenység adatainkat is [ 2 ].

### 2./ Fantomos besugárzás

A fantomon történő besugárzások közelebb esnek a gyakorlatban előforduló dozimetriai helyzethez annyiban, hogy a detektort a dolgozó személyek a testükön hordják.

Ilyenkor a fantomról nem elhanyagolható mértékben a termikus neutronok is visszaverődnek (1. ábra), ami különösen a természetes izotópösszetételű LiF esetében jelenthet nagy korrekciót. Abban az esetben, ha a termikus neutron-detektor is értékelhető eredményt ad /és ez nem minden esetben van így/, akkor ez a korrekció - a mérési bizonytalanság nagymértékű megnövekedése árán elvégezhető. Ha azonban a termikus neutron-detektorok nem adtak értékelhető eredményt, akkor a gyorsneutron detektorok által szolgáltatott fluens adatok, és a fantomon történt kalibráció - amit a jelen mérési sorozat határoz meg - segítségével juthatunk használható dózis adatokhoz.

Természetesen emellett figyelembe kell még vennünk, hogy a neutronenergia függvényében a neutronok relatív biológiai hatásossága más és más, és pedig a növekvő neutronenergiák esetén növekszik (5. ábra). Emiatt a gyorsneutron fluens veszélyesebb - nagyobb dózisegvenértéket hoz létre - mint a vele azonos nagyságu termikus fluens.

A IV. táblázat tartalmazza a fantom elejére helyezett TL detektorok esetében a gyorsneutron érzékenységi adatokat. /Mivel esetünkben a termikus neutron fluens csak mintegy 2,5 %-a volt a gyorsneutron fluensnek és a TL detektorok azonos fluensre vonatkozó neutron érzékenysége csökken a neutronenergia csökkenésével /lásd 3. és 4. ábrát/ - a  ${}^6\text{LiF}$ -ot kivéve, ahol kb. azonos nagyságrendű a két neutronérzékenység - emiatt azt a korrekciót itt nem végeztük el./

Megállapítható, hogy az egyezés jónak mondható - a LiF



tablettát kivéve - a szabad levegős besugárzásnál III. táblázat kapott neutronérzékenység eredményekkel. A LiF tablettát  $1,98 \pm 0,2 \cdot 10^{-10} \text{ Gy} \cdot \text{n}^{-1} \cdot \text{cm}^2$  termikus neutronérzékenységét [2] figyelembe véve, és a IV. táblázatban elvégezve a korrekciót:  $36,1$  és  $34,9 \cdot 10^{-12} \text{ Gy} \cdot \text{n}^{-1} \cdot \text{cm}^2$  helyett  $31,1$  és  $29,9 \cdot 10^{-12} \text{ Gy} \cdot \text{n}^{-1} \cdot \text{cm}^2$  gyorsneutron érzékenységet kapunk. Itt a korrekcióra már szükség volt, mert az elérte a 15-17 %-ot/.

Sokkal érdekesebb eset azonban, ahol a fantomot hátulról érte a 14,7 MeV-es gyors neutronnyaláb. Az erre vonatkozó adatokat az V. táblázat tartalmazza. /A gyakorlati esetek nagy részében lehetetlen eldönteni, hogy a nyaláb melyik irányból érte a dolgozót./ A TL érzékenységnél mind a termikus neutronok hatását figyelmen kívül hagyó, a korrigálatlan neutronérzékenységet is és a TLD-k termikus neutronérzékenységgel [2] korrigáltat is megadtuk. Mint látható ezek a neutronérzékenységi adatok már jelentős mértékben eltérnek a szabad levegő geometriájú besugárzásnál /III. táblázat/ és a fantom elejére helyezett TLD-k esetén kapott neutronérzékenységi értékektől /IV. táblázat/.

Ez valószínűleg azzal magyarázható, hogy - mérés-technikai okokból - a mért gyorsneutronfluensbe belemértük az intermedier neutronokat is /mindazokat a neutronokat, amelyek energiája 0,5 eV-nál nagyobb/, és ebben az esetben, amikor a fantomon a neutronsugárzás keresztülhalad az alacsonyabb /de 0,5 eV-nál magasabb/ energiájú neutronok részaránya megnövekszik.

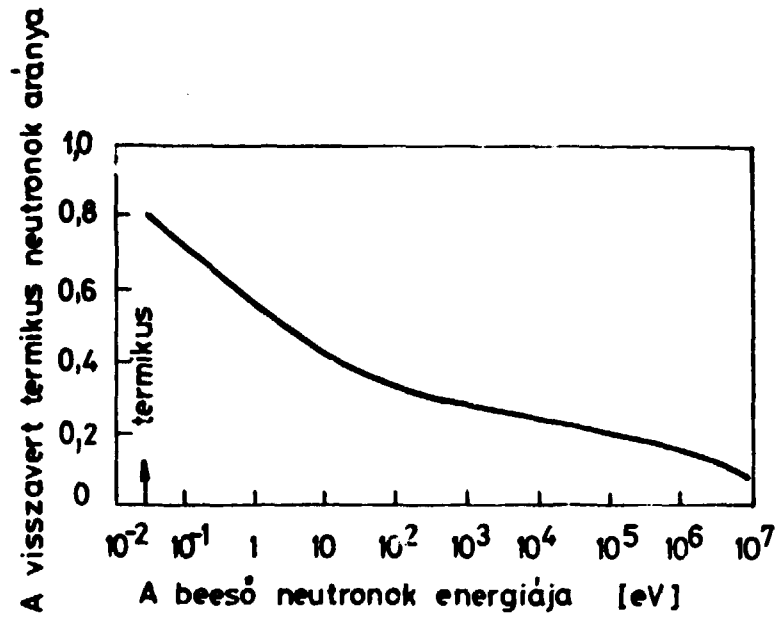
A  ${}^7\text{LiF}$  TL detektornál a  ${}^6\text{Li}$  tartalom nagymértékben befolyásolja a termikus neutronérzékenység értékét. A  ${}^7\text{LiF}$  /TLD-700/-nál a  ${}^6\text{Li}$  tartalmat 0,034 %-tól 0,087 %-ig különbözőnek találták, aminek a hatására a termikus neutronérzékenység  $0,87 - 2,3 / \times 10^{-12} \text{ Gy.n}^{-1}.\text{cm}^2$  között változott [13]. Mivel korábban mi is vizsgáltuk a  ${}^7\text{LiF}$  /TLD-700/ termikus neutronérzékenységét [1,2], ezért megvizsgáltuk a Harshaw gyártmányu  ${}^7\text{LiF}$  /TLD-700/ TL detektorunk  ${}^6\text{Li}$  tartalmát tömegspektrometriai mérési módszerrel. A  ${}^6\text{Li}$  tartalom az esetünkben  $0,045 \pm 0,01$  % volt, magasabb a gyári adatlapokon szereplő 0,007 %-nál.

A  ${}^7\text{LiF}$  /TLD-700/ termikus neutronérzékenységére a ZR-4 reaktor termikus oszlopában  $2,25 \times 10^{-12} \times \text{Gy.n}^{-1}.\text{cm}^2$  értéket mértük [1], ami jó egyezést mutat a fenti termikus neutronérzékenységekkel. Míg az NBS rektor mellett mért  $1,07 \pm 0,2 / \times 10^{-11} \text{ Gy.n}^{-1}.\text{cm}^2$  érték [2] több mint négyszerese a korábban mért termikus neutronérzékenységi értéknek [1], ami arra utal, hogy a termikus neutron fluxus által okozott felaktiválódás hatására - és az egy hónapos pihenési idő alatt létrejövő - sajátbesugárzás mértéke, nagyobb lehetett az általunk becsült értéknél [2].

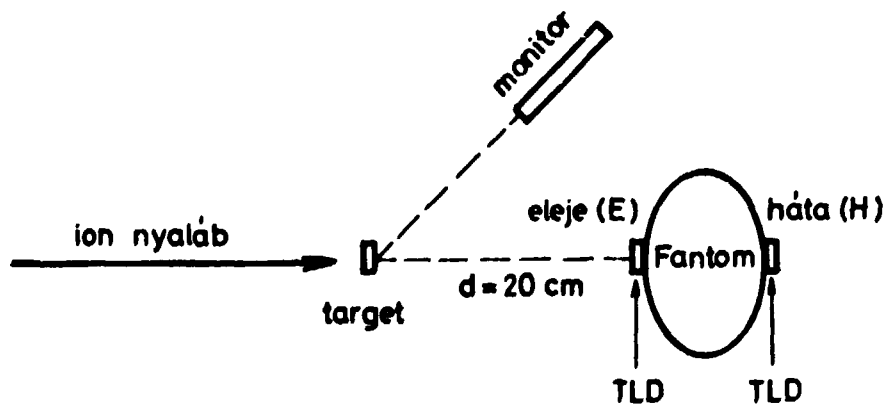
Hivatkozások

- [ 1 ] Szabó P.P., Pálfalvi J.: Rutin személyi dozimetriában használt LiF TL detektorok termikus neutronérzékenységének vizsgálata a ZR-4-es reaktor termikus oszlopában. KFKI-1982-41.
- [ 2 ] Szabó P.P., Pálfalvi J.: A LiF és a CaSO<sub>4</sub> termolumineszcens detektorok neutronérzékenységének vizsgálata. KFKI-1983-45.
- [ 3 ] C.M. Sunta, K.S.V. Nambi, V.N. Bapat: Fast neutron response of thermoluminescence detectors with the proton radiator technique. Proc. Symp. on Neutron Monitoring for Radiation Protection Purposes, Vienna IAEA-SM-167/10.
- [ 4 ] M.R. Mayhugh, S. Watanabe, R. Muccillo: Thermal neutron dosimetry by phosphor activation. Proc. 3rd Int. Conf. on Luminescence Dosimetry, Danish AEC. Risø, 1971, Risø Report 249, 1040-1050.
- [ 5 ] M. Oberhofer, A. Scharmann: Applied Thermoluminescence Dosimetry, 1981, Adam Hilger Ltd, Bristol
- [ 6 ] Pálfalvi J.: Neutron spektrum és dóziseloszlás vizsgálatok számítással és méréssel elliptikus fantomban ciklotron 3,2 MeV és 14 MeV energiájú neutronokra. OKKFT A/11-7.1.8. jelentés, 1983.
- [ 7 ] A.F. McKinlay: Thermoluminescence Dosimetry, 1981, Adam Hilger Ltd, Bristol.
- [ 8 ] S.I. Tanaka, Y. Furuta: Revised energy responses of <sup>6</sup>LiF and <sup>7</sup>LiF thermoluminescence dosimeters to neutrons. Nuclear Instr. Methods, 140 /1977/ 395-396.

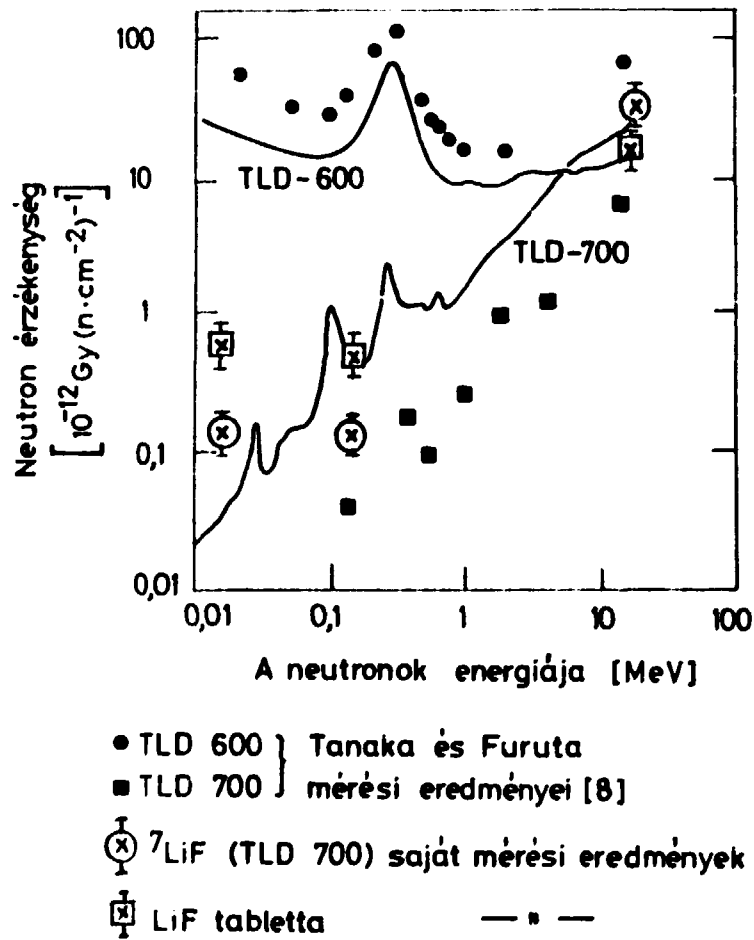
- [ 9] Y.S. Horowitz: Comment on the calculation of fast neutron thermoluminescent sensitivities. Nucl. Instr. Meth., 174 /1980/ 323-324.
- [10] Y. Furuta, S.I. Tanaka: Neutron dosimetry by thermoluminescence dosimeter. International Symp. on Radiation Physics, Calcutta, 1974.
- [11] ICRU report No 26, 1977, Neutron Dosimetry for Biology and Medicine /Washington, ICRU/.
- [12] D. Pearson, J. Wagner, P.R. Moran, J.R. Cameron: Fast neutron dosimetry using activated TL phosphors, CCO-1105-175, 8 old., 1972.
- [13] K. Becker: Solid State Dosimetry, CRC Press.



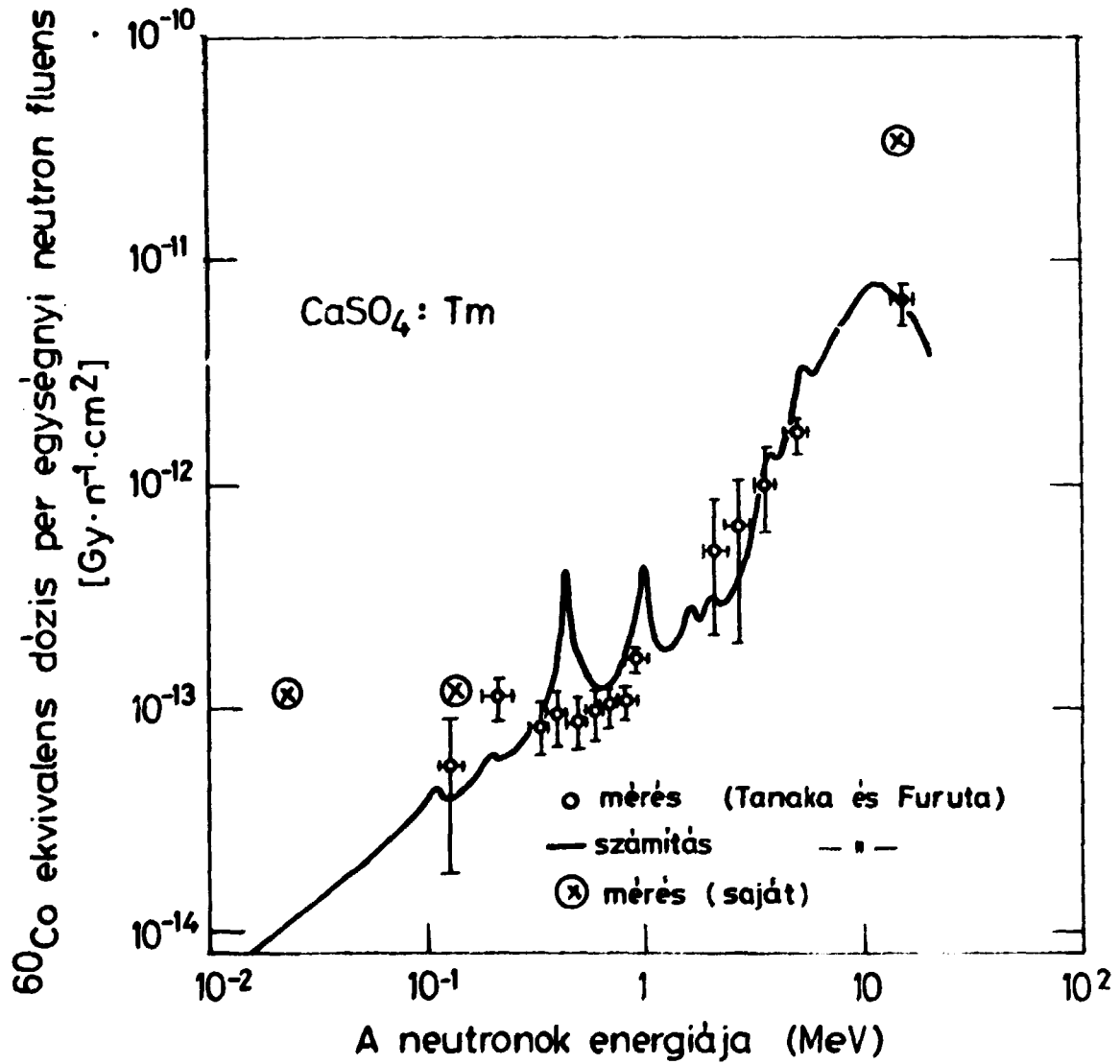
1. ábra. Az emberi testről visszaszóródott termikus neutronok aránya a beeső neutronok energiájának függvényében [5]



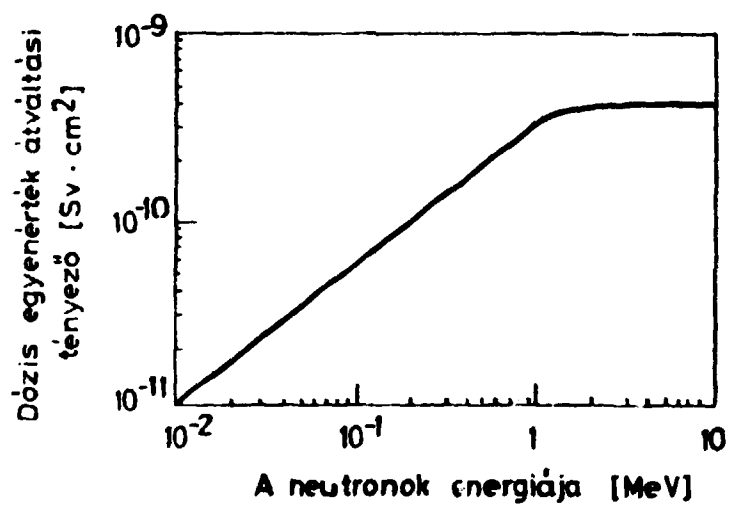
2. ábra. Besugárzási elrendezés az ATOMKI 14,7 MeV-es neutrongenerátornál



3. ábra. A  $^7\text{LiF}$  /TLD-700/ és a  $^6\text{LiF}$  /TLD-600/ neutron-  
érzékenységére vonatkozó számított [7] és mért  
irodalmi adatok [8] összehasonlítva a  $^7\text{LiF}$ -re  
/TLD-700/ és a LiF tablettára vonatkozó saját  
mérési eredményeinkkel [1, 2]



4. ábra. A CaSO<sub>4</sub>:Tm neutronérzékenységére vonatkozó számított [10] és mért adatok [10, 1, 2]



5. ábra. A neutron fluens és a dózisegyenérték közötti átváltási tényező a neutronok energiájának függvényében [5].



I. táblázat

A mért neutron fluens adatok és besugárzási körülmények a 14,7 MeV-es neutron besugárzásoknál

A besugárzás sorszám	A gyors és intermedier neutron fluens $\phi_{E > 0,5 \text{ eV}} [10^8 \cdot \text{n} \cdot \text{cm}^{-2}]$	Termikus neutron fluens $\phi_{\text{term}} [10^6 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}]$	Monitor jelzés $[10^6 \text{ beütés}]$	Besugárzási geometria
1	11,1 $\pm$ 6%	28 $\pm$ 12%	2	fantom elején
2	3,7 $\pm$ 10%	3 $\pm$ 25%	2	fantom hátoldalán
3	17,4 $\pm$ 6%	44 $\pm$ 12%	3	fantom elején
4	5,9 $\pm$ 10%	4,9 $\pm$ 25%	3	fantom hátoldalán
5	9,5 $\pm$ 6%	< 1	2	szabad levegőn
6	14,3 $\pm$ 6%	< 1	3	szabad levegőn

II. táblázat  
A felhasznált TL detektorok és a hőkezelési,  
valamint a TLD kiértékelési paraméterek

TLD típus megnevezése	Ujrafelhasználás előtti hőkezelés	Fűtési véghő- mérséklet és idő
LiF tableta /MTS-N/	400 °C - 1 h 100 °C - 2 h	270 °C - 30 s
CaSO <sub>4</sub> :Dy por	400 °C - 0,5 h	315 °C - 30 s
CaSO <sub>4</sub> :Tm por	400 °C - 0,5 h	315 °C - 30 s
<sup>7</sup> LiF /TLD-700/ por	400 °C - 1 h 100 °C - 2 h	260 °C - 30 s

III. táblázat

A különböző TL detektorok gyorsneutron érzékenysége szabad levegő geometriájú gyorsneutron besugárzás esetén

TLD	$\phi_{E > 0,5 \text{ eV}}$ [ $10^9 \cdot \text{n} \cdot \text{cm}^{-2}$ ]	TL jelzés [mGy]	Gyorsneutron érzékenység [ $10^{-12} \text{ Gy} \cdot \text{n}^{-1} \cdot \text{cm}^2$ ]	A gyorsneutron érzé- kenységek átlaga [ $10^{-12} \text{ Gy} \cdot \text{n}^{-1} \cdot \text{cm}^2$ ]
LiF-7	0,95	29,0	30,6	34,4
	1,43	54,5	38,1	
CaSO <sub>4</sub> :Tm	0,95	34,1	35,9	36,7
	1,43	53,6	37,5	
CaSO <sub>4</sub> :Dy	0,95	31,4	33,0	32,1
	1,43	44,7	31,2	
LiF tableta	0,95	25,9	27,2	26,8
	1,43	37,8	26,4	

IV. táblázat

A fantom elején lévő, különböző TL detektorok gyorsneutron érzékenysége az egyes neutronbesugárzásoknál. A \* jel arra utal, hogy a közel két nagyságrenddel alacsonyabb termikus neutronfluens okozta járulékot nem vettük figyelembe.

TEL	Gyorsneutron fluens $\phi_{E>0,5 \text{ eV}}$ [ $10^8 \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ ]	Termikus neutron fluens $\phi_{\text{term}}$ [ $10^6 \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$ ]	TL jelzés [mGy]	TL érzékenység [ $10^{-12} \text{ Gy}\cdot\text{n}^{-1} \text{ cm}^2$ ]
LiF-7	11,1	28	$33,7 \pm 0,8$	30,4 *
	17,4	44	48,5	27,9 *
LiF tabletta	11,1	28	$40,1 \pm 2,4$	36,1 * 31,1
	17,4	44	$60,7 \pm 3,6$	34,9 * 29,9
CaSO <sub>4</sub> :Dy	11,1	28	$35,5 \pm 0,9$	32,0 *
	17,4	44	$53,5 \pm 2,0$	30,7 *
CaSO <sub>4</sub> :Tm	11,1	28	$38,4 \pm 0,8$	34,6 *
	17,4	44	$66,8 \pm 1,5$	38,4 *

V. táblázat

A fantom hátoldalán elhelyezett TL detektorok gyorsneutron érzékenysége.

A \* jel arra utal, hogy a termikus neutronfluens hatását - az itt megadott számoknál - nem vettük figyelembe

TLD	Gyors neutron fluens $\phi_E > 0,5$ eV [ $10^8$ n·cm <sup>-2</sup> ]	Termikus neutron fluens [ $10^6$ n·cm <sup>-2</sup> ]	TL jelzés [mGy]	TL érzékenység [ $10^{-12}$ Gy·n <sup>-1</sup> ·cm <sup>2</sup> ]	
LiF-7	3,7	3	4,40 ± 0,23	11,9*	11,8
	5,9	4,9	6,71 ± 0,29	11,4*	11,3
LiF tableta	3,7	3	7,77 ± 0,85	21*	19,4
	5,9	4,9	11,7 ± 1,0	19,8*	18,2
CaSO <sub>4</sub> :Dy	3,7	3	5,35 ± 0,22	14,4*	14,4
	5,9	4,9	7,17 ± 0,25	12,1*	12,1
CaSO <sub>4</sub> :Tm	3,7	3	5,28 ± 0,21	14,2*	14,2
	5,9	4,9	7,69 ± 0,26	13,0*	12,9

Kiadja a Központi Fizikai Kutató Intézet  
Felelős kiadó: Gyimesi Zoltán  
Szakmai lektor: Rónaky József, Virágh Elemér  
Példányszám: 225 Törzsszám: 84-182  
Készült a KFKI sokszorosító üzemében  
Felelős vezető: Nagy Károly  
Budapest, 1984. március hó