

Chapitre IX: Dosimètres thermoluminescents

Dosimètres thermoluminescents (TLD)

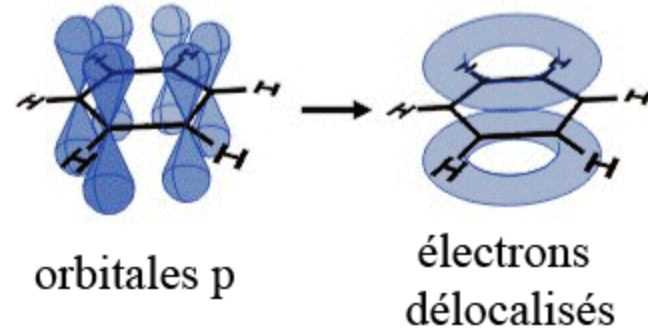
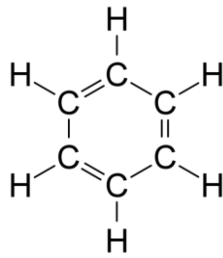
- Suite à l'absorption de rayonnements → certains matériaux (semiconducteurs ou isolants, pas les métaux) conservent une partie de l'énergie absorbée dans des états métastables
- Quand cette E est libérée sous forme de rayonnement UV, visible ou IR → phénomène est appelé luminescence
- Le processus de luminescence peut être accéléré sous l'action d'un stimulus extérieur (chaleur, lumière)
- Quand stimulus extérieur = chaleur → thermoluminescence
- Quand la thermoluminescence est utilisé en dosimétrie → dosimètre thermoluminescent (TLD)
- Références:
 - A.J.J. Bos, *High sensitivity thermoluminescence dosimetry*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B 184 (2001) 3-28
 - A.J.J. Bos, *Theory of thermoluminescence*, Radiation Measurements 41 (2007) S45–S56

Luminescence

- Quand un rayonnement ionisant interagit avec un matériau → un grand nombre de molécules sont excitées ou ionisées
- Quand ces molécules retournent à leur état fondamental → création (parfois) de centres de luminescence → émission (parfois) de photons visibles ou proches du visible → luminescence
- 3 types of luminescence
 1. Fluorescence: l'émission de lumière a lieu « immédiatement » après l'absorption ($t < 10^{-8}$ s, c.à.d. le temps pour transition atomique)
 2. Phosphorescence: l'émission de lumière est retardée ↔ état excité métastable (t entre absorption et émission: qqes μ s → qqes h)
 3. Fluorescence retardée: un centre de phosphorescence est transformé en centre de fluorescence suite à un stimulus extérieur → fluorescence « normale » après un temps plus élevé

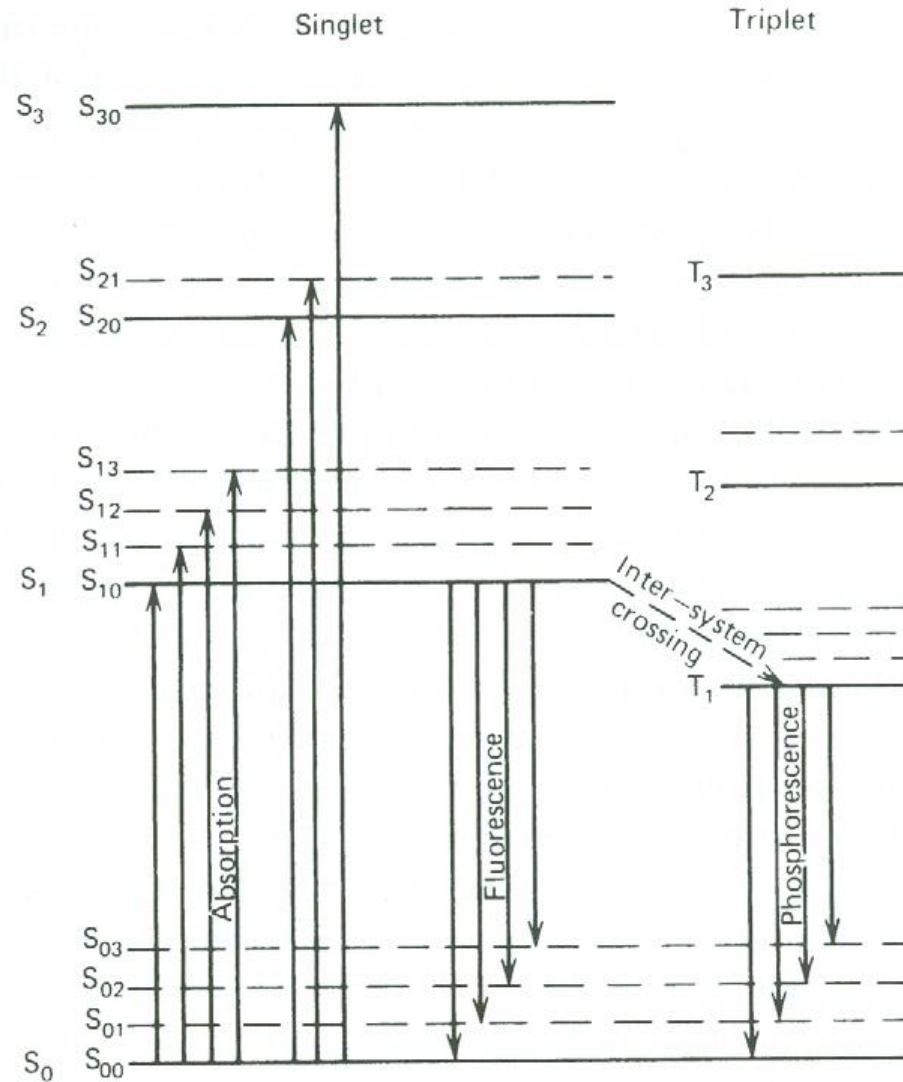
Exemple fluorescence \leftrightarrow phosphorescence: Benzène

- Benzène (C_6H_6) \rightarrow électrons- π \rightarrow spin = 0 (singulet: S_i) ou spin = 1 (triplet: T_i)



- Absorption d'énergie \rightarrow désexcitation non-radiative des niveaux énergétiques élevés vers l'états S_{10}
- Transitions entre S_{10} et S_{0i} avec émission de lumière (fluorescence)
- Transition entre S_{10} et T_{10} \rightarrow transition lente vers S_0 (phosphorescence) ou excitation due à l'extérieur vers S_{10}

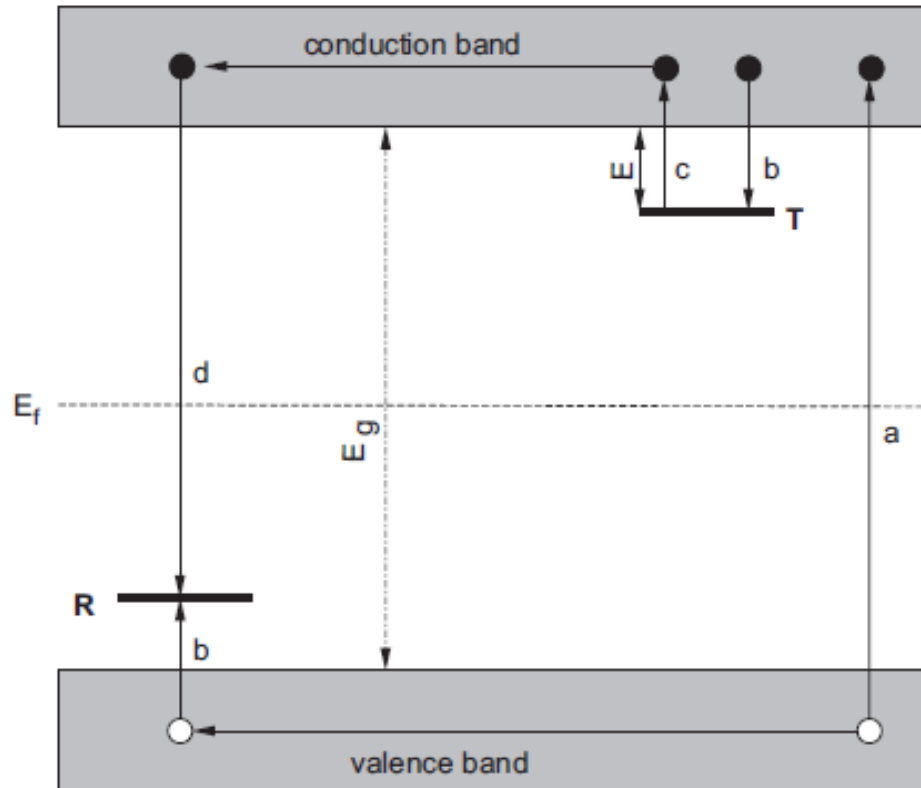
Niveaux énergétique du benzène



Modèle: 1 piège – 1 centre de recombinaison

- Modèle en bandes d'énergie
- Intensité du signal lumineux
- Cinématique au 1^{er} ordre
- Cinématique au 2^{ème} ordre
- Cinématique aux ordres supérieurs
- Efficacité de luminescence

Modèle en bandes d'énergie (1)



- E_g : énergie de la bande interdite
- E_f : énergie de Fermi
- T : piège à électron (avec E , E du piège ou E d'activation)
- R : centre de recombinaison

Modèle en bandes d'énergie (2)

- Semiconducteurs ou isolants → structure en bande
- Défauts structurels ou impuretés (→ caractérisation complète impossible → pas 2 TLD identiques) → niveaux dans la bande interdite → modèle simple → 2 niveaux: 1 en-dessous de la bande de conduction (T) et l'autre au-dessus de la bande de valence (R)
- $E_T > E_f$ → vide à l'état d'équilibre et avant l'irradiation
- Quand $h\nu > E_g$ est absorbé → ionisation d' e^- de la bande de valence → après thermalisation → e^- libres dans la bande de conduction et h^+ dans la bande de valence (transition a)

Modèle en bandes d'énergie (3)

- 2 possibilités
 1. Recombinaison directe → excitation d'un centre de luminescence (correspondant à un centre de recombinaison)
 2. Piégeage d'e⁻ en T et de h⁺ en R (transition b)
- La probabilité p de libération par unité de temps (transition c) de l' e⁻ piégé est donnée par la loi d'Arrhenius:

$$p = s \exp \left(-\frac{E}{kT} \right)$$

avec s , le facteur de fréquence (constant dans les modèles simples et $\approx 10^{12} - 10^{14} \text{ s}^{-1}$, la fréquence de vibration du réseau), $k = 8.617 \cdot 10^{-5} \text{ eVK}^{-1}$, la constante de Boltzmann et T , la température (en K^{-1})

Modèle en bandes d'énergie (4)

- Si $E \gg kT_0$, avec T_0 la T d'irradiation ($T \approx 300$ K) \rightarrow les e^- sont piégés indéfiniment (ou du moins sur une période longue par rapport au temps de dépouillement)
- $N(e^-) = N(h^+)$ car créés par paires
- $E(R) < E_f < E(T) \rightarrow$ situation de non-équilibre \rightarrow transition vers l'équilibre toujours possible mais taux de relaxation lent \rightarrow état métastable
- Le retour à l'équilibre est accéléré si $T \nearrow \rightarrow$ l' e^- migre dans la bande de conduction jusqu'à un centre de recombinaison R (correspondant à un centre de luminescence) \rightarrow émission de lumière (transition d) \rightarrow thermoluminescence
- Attention: en pratique parfois processus non-radiatif

Intensité du signal lumineux (1)

- L'intensité $I(t)$ de photons par unité de temps durant le chauffage est \propto au taux de recombinaison des e^- et des h^+ en R (chaque recombinaison produit un photon qui est détecté) \rightarrow avec m (m^{-3}), la concentration des h^+ en R \rightarrow

$$I(t) = -\frac{dm}{dt}$$

- Le taux de recombinaison est aussi \propto à la concentration d' e^- libres dans la bande de conduction, n_c , et de h^+ \rightarrow

$$I(t) = -\frac{dm}{dt} = n_c m A_m$$

avec A_m , la probabilité de recombinaison (m^3s^{-1}) indépendant de T

Intensité du signal lumineux (2)

- Le taux de concentration des e^- piégés, n , est égal au taux de libération thermique - le taux de repiégeage \rightarrow

$$-\frac{dn}{dt} = np - n_c(N - n)A_n$$

avec N , la concentration de pièges à e^- et A_n , la probabilité de repiégeage

- En outre \rightarrow le taux de concentration des e^- libres dans la bande de conduction est égal au taux de libération thermique - (le taux de repiégeage + le taux de recombinaison) \rightarrow

$$\frac{dn_c}{dt} = np - n_c(N - n)A_n - n_c mA_m$$

Intensité du signal lumineux (3)

- Pas de solution analytique à ces équations → hypothèse de Chen et Mc Keever → quasi-équilibre (QE):

$$\left| \frac{dn_c}{dt} \right| \ll \left| \frac{dn}{dt} \right| \quad \text{et} \quad \left| \frac{dn_c}{dt} \right| \ll \left| \frac{dm}{dt} \right|$$

→ la concentration des e^- libres dans la bande de conduction est quasi stationnaire

- Comme $dn_c/dt \approx 0 \rightarrow$

$$n_c = \frac{np}{(N - n)A_n + mA_m}$$




$$I(t) = \frac{mA_m ns \exp(-E/kT)}{(N - n)A_n + mA_m}$$

Cinématique au 1^{er} ordre (1)

Cette éq. ne peut pas être résolue analytiquement →
hypothèse supplémentaire de Randall et Wilkins → repiégeage
négligeable →

$$mA_m \gg (N - n)A_n$$


$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = ns \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) = np$$

Si $T = \text{cste} \rightarrow p = \text{cste}$



$$I(t) = I_0 \exp(-tp) \quad \text{avec } I_0: \text{intensité initiale}$$



Décroissance exponentielle

Cinématique au 1^{er} ordre (2)

Si $T = \nearrow \rightarrow p \neq \text{cste}$



$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n_0 s \exp\left(\frac{-E}{kT(t)}\right) \times \exp\left[-s \int_0^t \exp\left(\frac{-E}{kT(t')}\right) dt'\right]$$

avec n_0 : nombre d'e⁻ piégés en $t=0$

- $T \nearrow \rightarrow$ libération des e⁻ et recombinaison $\rightarrow I(t) \nearrow$
- $T \nearrow \rightarrow$ maximum
- $T \nearrow \rightarrow$ diminution du nombre de porteurs de charge $\rightarrow I(t) \searrow$



Pic \rightarrow « glow peak » (GP) du premier ordre

GP du premier ordre

- Si T varie linéairement \rightarrow

$$T(t) = T_0 + \beta t$$

avec T_0 : T pour $t = 0$ et β , la vitesse de chauffage

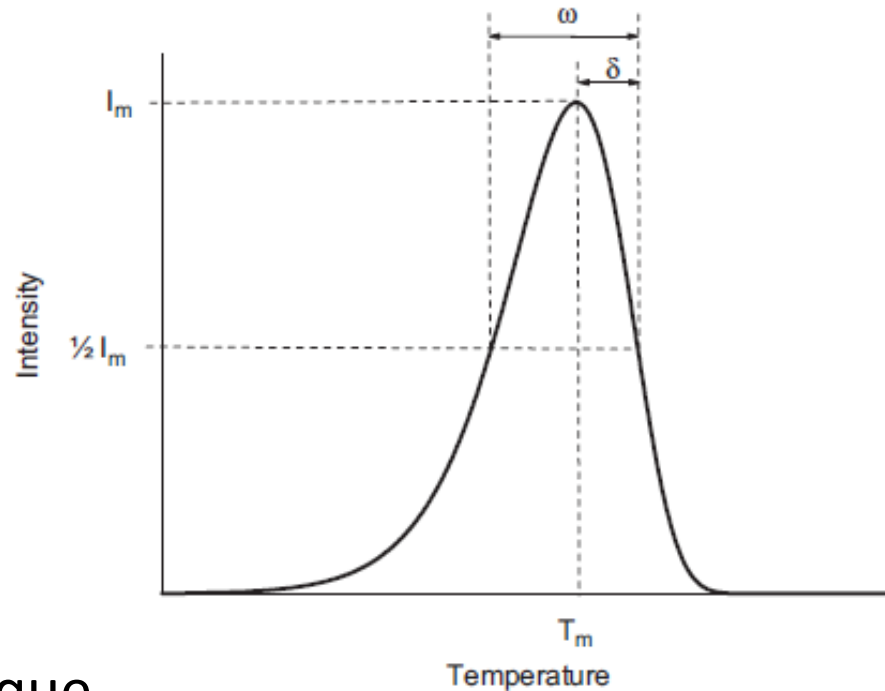
- Le GP devient (en fonction de T) \rightarrow

$$I(T) = -\frac{1}{\beta} \frac{dn}{dT} = n_0 \frac{s}{\beta} \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \times \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(\frac{-E}{kT'}\right) dT'\right]$$



Expression du 1^{er} ordre de Randall-Wilkins du GP

Forme du GP du premier ordre



- Pic asymétrique
- Facteur géométrique $\mu_g = \delta/\omega$ avec ω , la largeur à mi-hauteur et δ , la demi-largeur à mi-hauteur (à haute T) \rightarrow typiquement $\mu_g = 0.42$
- T_m : la T au maximum I_m
- Pour T petit \rightarrow décroissance exponentielle ($\exp[-E/kT]$) domine

Maximum du GP

- La condition pour obtenir le maximum \rightarrow

$$\frac{dI}{dt} = 0 \quad \text{ou} \quad \frac{d[\ln I(T)]}{dT} = 0$$

- Ce qui donne la relation de Randall-Wilkins \rightarrow

$$\frac{\beta E}{kT_m^2} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_m}\right)$$

qui peut être résolue de manière itérative

- Dans la relation de Randall-Wilkins $\rightarrow n_0$ n'apparaît pas $\rightarrow T_m$ indépendant de n_0

Importance de n_0

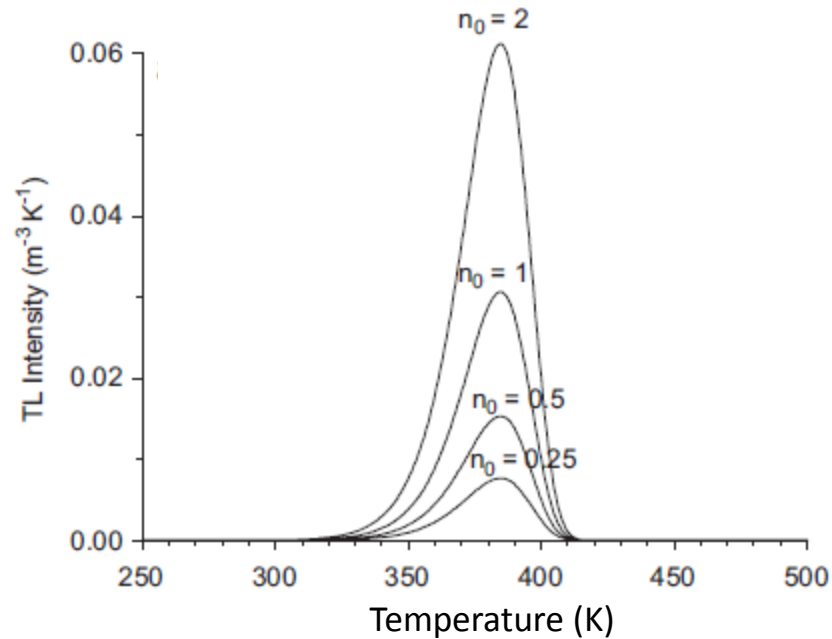
- n_0 : paramètre important en dosimétrie $\rightarrow n_0 \propto D$

- n_0 est égal à l'aire du GP \rightarrow

$$\int_0^{\infty} I(t) dt = - \int_0^{\infty} \frac{dn}{dt} dt = - \int_{n_0}^{n_{\infty}} dn = n_0 - n_{\infty}$$

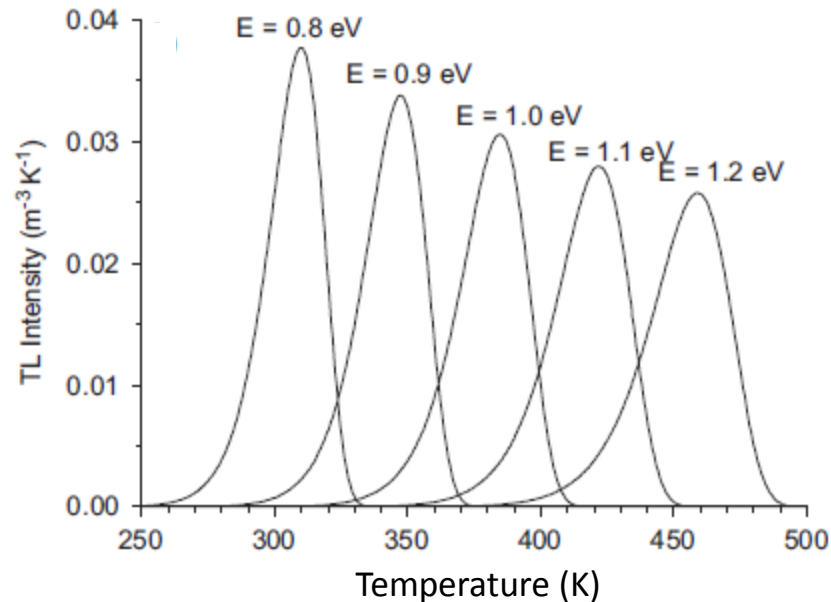
avec $n_{\infty} \rightarrow 0$ pour $t \rightarrow \infty$

Évolution du GP en fonction de n_0



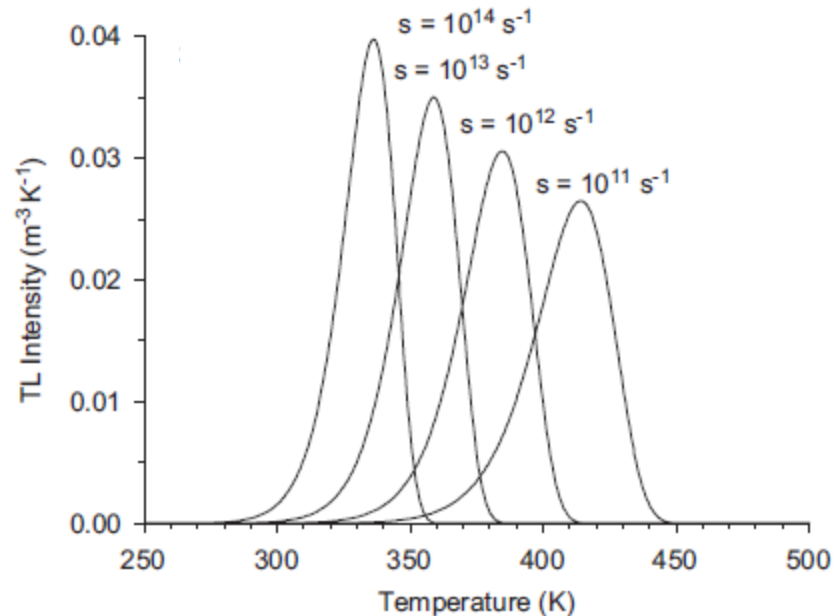
- $\text{GP}(T, n_0)$ pour $E = 1 \text{ eV}$, $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$ et $\beta = 1 \text{ Ks}^{-1}$ ($[n_0] = \text{m}^{-3}$)
- T_m est constant pour qui n_0 varie

Évolution du GP en fonction de E



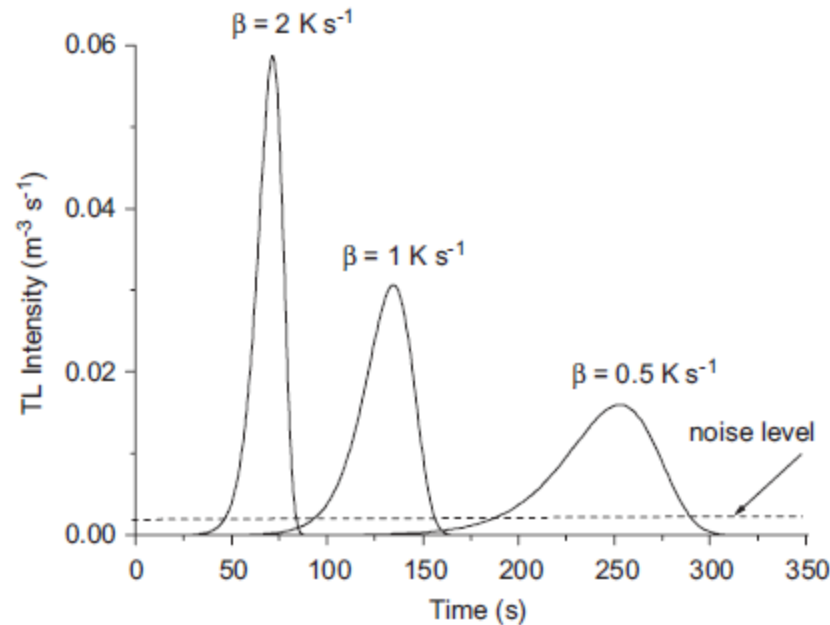
- $GP(T,E)$ pour $n_0 = 1 \text{ m}^{-3}$, $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$ et $\beta = 1 \text{ Ks}^{-1}$ ($[E] = \text{eV}$)
- $E \nearrow \rightarrow$ shift du GP vers les hautes T , \searrow de la hauteur et \nearrow de ω avec l'aire qui reste constante
- Shift du GP vers les hautes T quand $E \nearrow$ car piège plus profond \rightarrow plus d'énergie nécessaire (\rightarrow plus haute T) pour libérer l' e^-

Évolution du GP en fonction de s



- $\text{GP}(T,s)$ pour $n_0 = 1 \text{ m}^{-3}$, $E = 1 \text{ eV}$ et $\beta = 1 \text{ Ks}^{-1}$ ($[s] = \text{s}^{-1}$)
- $s \nearrow \rightarrow$ shift du GP vers les basses T , \nearrow de la hauteur et \searrow de ω avec l'aire qui reste constante
- $s \nearrow \rightarrow$ probabilité de libération + grande \rightarrow moins d' E nécessaire (\rightarrow plus basse T) pour libérer l' e^-

Évolution du GP(t) en fonction de β




- $GP(t, \beta)$ pour $n_0 = 1 \text{ m}^{-3}$, $E = 1 \text{ eV}$ et $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$ ($[\beta] = \text{K s}^{-1}$)
- Hauteur du GP \propto à n_0 mais aussi à $\beta \rightarrow$ confirmé par l'expression pour I_m de Hoogenboom \rightarrow

$$I_m = n_0 \frac{\beta E}{k T_m^2} e^{-g_m}$$

Expression pour I_m de Hoogenboom (1)

$$I(t) = n_0 s \exp\left(\frac{-E}{kT(t)}\right) \exp\left[-s \int_0^t \exp\left(\frac{-E}{kT(t')}\right) dt'\right]$$



$$I_m = I(t_m) = n_0 s \exp\left(\frac{-E}{kT_m}\right) \exp\left[-s \int_0^{t_m} \exp\left(\frac{-E}{kT(t')}\right) dt'\right]$$

Avec $T(t) = T_0 + \beta t$, on considère:

$$\int_0^t e^{-E/kT'} dt' = \frac{E}{\beta k} \int_{E/kT}^{E/kT_0} e^{-z} \frac{dz}{z^2}$$

$$\approx \frac{E}{\beta k} \int_{E/kT}^{\infty} e^{-z} \frac{dz}{z^2}$$

Justifié pour $T_0 \ll T_m$

$$= \frac{kT^2}{\beta E} e^{-E/kT} g\left(\frac{E}{kT}\right)$$

Expression de I_m de Hoogenboom (2)

avec $g(x) = x^2 e^x \int_x^\infty e^{-z} \frac{dz}{z^2} = x e^x \int_1^\infty e^{-xu} \frac{du}{u^2} = x e^x E_2(x)$

et $E_2(x)$, l'intégrale exponentielle du deuxième ordre

En reprenant:

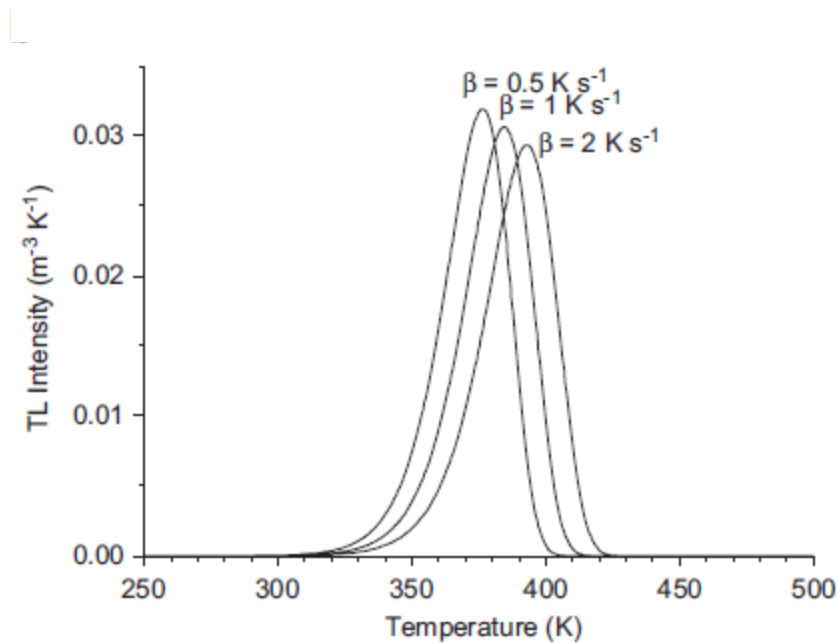
$$\frac{\beta E}{kT_m^2} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_m}\right)$$



$$I_m = n_0 \frac{\beta E}{kT_m^2} e^{-g_m}$$

En prenant $g_m = 1 \rightarrow$ sous-estimation de I_m de 10%

Évolution du GP(T) en fonction de β



- $\text{GP}(T, \beta)$ pour $n_0 = 1 \text{ m}^{-3}$, $E = 1 \text{ eV}$ et $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$ ($[\beta] = \text{K s}^{-1}$)
- $\beta \nearrow \rightarrow$ shift du GP vers les hautes T , \searrow de la hauteur et \nearrow de ω avec l'aire qui reste constante \rightarrow comportement opposé à celui de $s \rightarrow$ normal car rapport s/β dans l'éq. caractérisant $I(T)$

Expression approchée de $I(T)$

- Approximation de Kitis \rightarrow l'intégrale est approchée par des séries asymptotiques \rightarrow

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

avec $\Delta = 2kT/E$ et $\Delta_m = 2kT_m/E$

- Expression utile pour le fitting

Cinématique au 2^{ème} ordre (1)

- À l'opposé de Randall et Wilkins, Garlick et Gibson considère que le repiégeage domine \rightarrow

$$mA_m \ll (N - n)A_n$$

- 2 autres hypothèses $\rightarrow N \gg n$ (pièges très loin de la saturation) et $n = m \rightarrow$

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = s \frac{A_m}{NA_n} n^2 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

- Donc $\rightarrow dn/dt \propto n^2 \rightarrow$ réaction du deuxième ordre

Cinématique au 2^{ème} ordre (2)

- En supposant des probabilités égales pour la recombinaison et le piégeage $\rightarrow A_m = A_n$ et $T = \text{constante} \rightarrow$

$$I(t) = \frac{I_0}{(1 + n_0 \alpha t)^2}$$

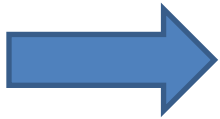
avec $\alpha = s/N \exp(-E/kT) \rightarrow$ équation du deuxième ordre

- On observe une décroissance hyperbolique et non plus exponentielle

GP du deuxième ordre

- En supposant à nouveau $\rightarrow T(t) = T_0 + \beta t \rightarrow$

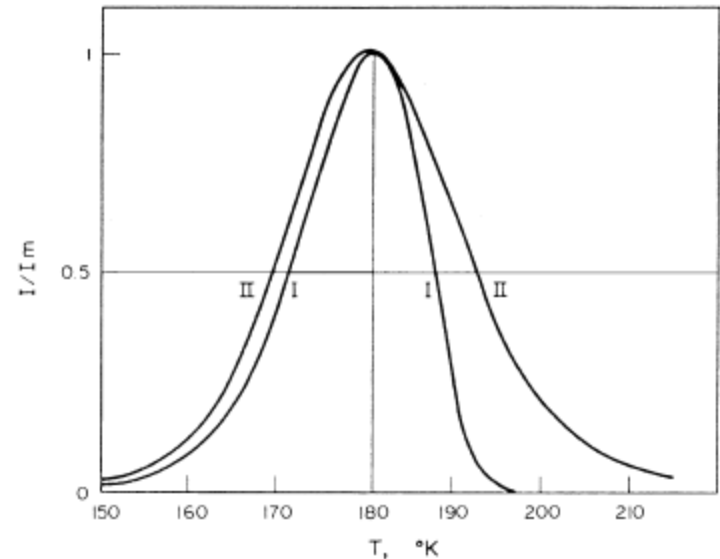
$$I(T) = = \frac{n_0^2 s}{N \beta} \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \times \left[1 + \frac{n_0 s}{N \beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT' \right]^{-2}$$



Expression du 2^{ème} ordre de Garlick-Gibson du GP

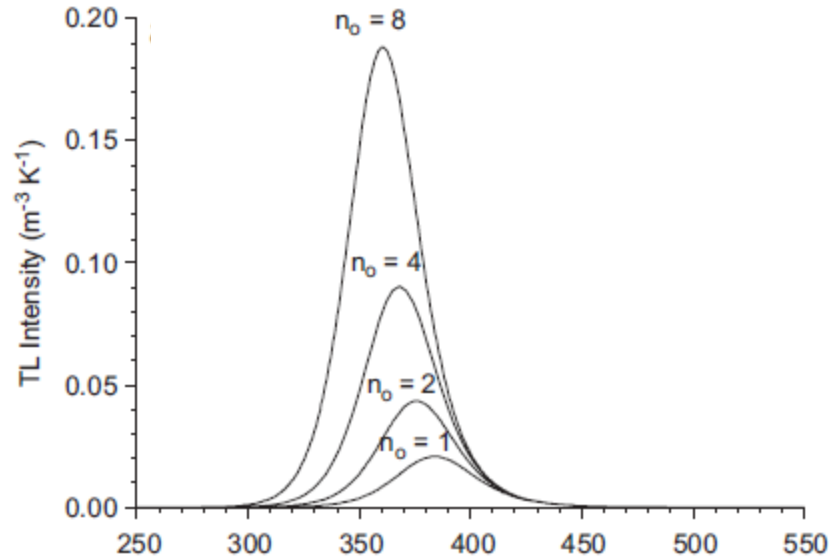
Forme du GP du 2^{ème} ordre

Comparaison entre GP
du 1^{er} et 2^{ème} ordre



- La demi-largeur à mi-hauteur à haute $T >$ la demi-largeur à mi-hauteur à basse T
- Typiquement $\mu_g = 0.52$ (plus grand que pour le 1^{er} ordre) \rightarrow concentration significative d' e^- libérés sont repiégés avant recombinaison \rightarrow délais de l'émission lumineuse et élargissement de la courbe

Évolution du GP du 2^{ème} ordre en fonction de n_0



- $GP^{(2)}(T, n_0)$ pour $E = 1$ eV, $s = 10^{12}$ s⁻¹ et $\beta = 1$ Ks⁻¹ ($[n_0] = \text{m}^{-3}$)
- $T_m \searrow$ quand $n_0 \nearrow \rightarrow$ différence principale par rapport au 1^{er} ordre
- Aire de la courbe $\propto n_0$ comme pour le 1^{er} ordre mais intensité de la courbe n'est plus directement proportionnelle à n_0 (même si la déviation est petite)

Expression approchée de $I(T)^{(2)}$ (2^{ème} ordre)

Approximation de Kitis (avec à nouveau $\Delta = 2kT/E$ et $\Delta_m = 2kT_m/E$) \rightarrow

$$I(T) = 4I_m \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) \times \left[\frac{T^2}{T_m^2} (1 - \Delta) \times \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) + 1 + \Delta_m \right]^{-2}$$

Cinématique aux ordres supérieurs

- Dans la plupart des cas pratiques → on est en présence des modèles du 1^{er} (clairement dominant) ou du 2^{ème} ordre ↔ les conditions présentées doivent être respectées
- Si conditions non-respectées → modèle empirique d'ordre supérieur de May et Partridge →

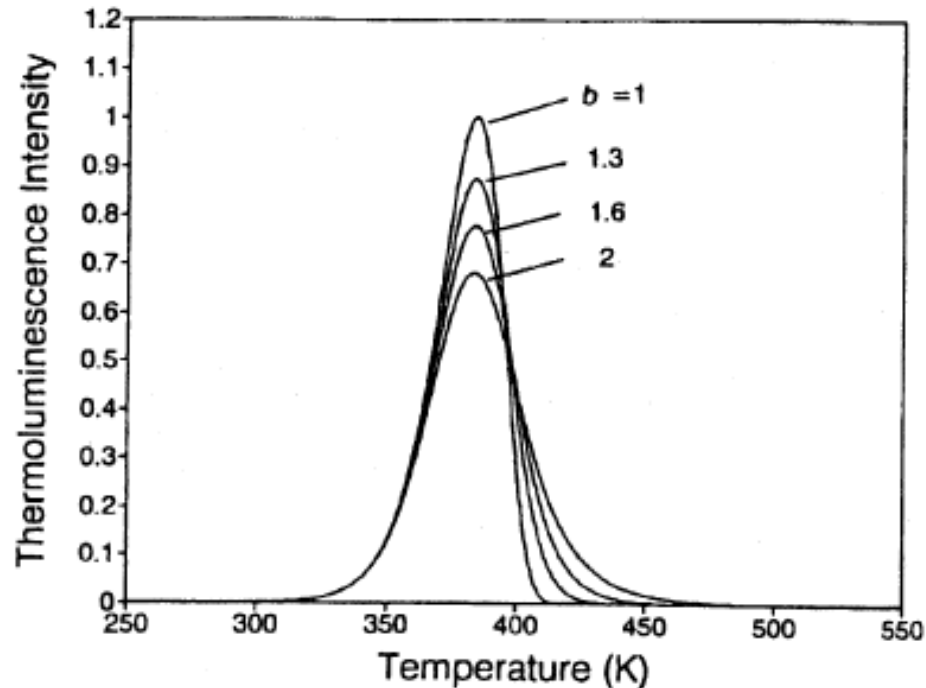
$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = s'n^b \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

avec b , le paramètre d'ordre général et $[s'] = m^{3(b-1)}s^{-1}$

- Pour $b \neq 1$ (avec $s'' = s'n_0^{(b-1)}$) →

$$I(T) = \frac{s''}{\beta} n_0 \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \times \left[1 + (b-1) \frac{s''}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT' \right]^{-b/b-1}$$

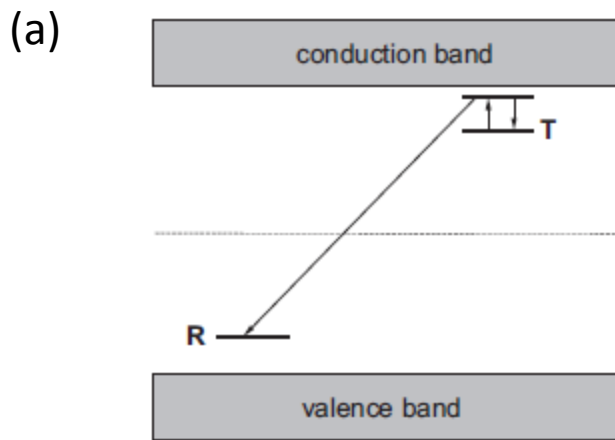
Comparaison des GP des \neq ordres



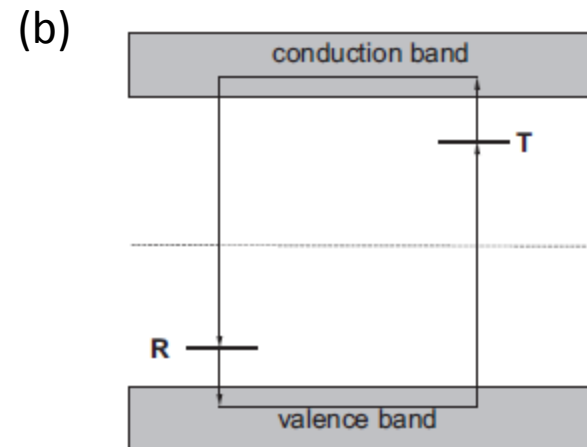
GP(T, b) pour $n_0 = 1 \text{ m}^{-3}$, $E = 1 \text{ eV}$, $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$ et $\beta = 1 \text{ Ks}^{-1}$ pour $b = 1, 1.3, 1.6, 2$

Discussion sur les différentes hypothèses (1)

- Hypothèse QE \rightarrow modèle + complexes (sans QE) donnent des résultats très similaires pour un GP du 1^{er} ordre
- Hypothèse du modèle simple (recombinaison via une transition d'un e^- dans la bande de conduction) \rightarrow autres possibilités existent:



Recombinaison avec un e^- thermiquement excité dans le piège



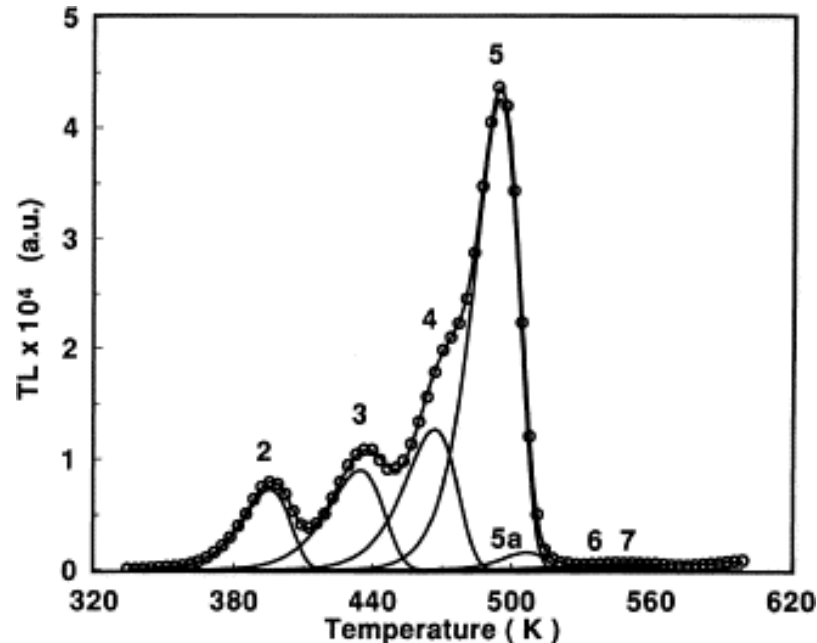
Libération simultanée du e^- et du h^+

Discussion sur les différentes hypothèses (2)

- (a) → nécessite une proximité entre le piège et le centre de recombinaison → cependant, des pièges et des centres de recombinaison « vraiment » isolés sont rares → phénomène fréquent → remplacement du facteur de fréquence s par « la quantité adéquate »
- (a) → probabilité de repiégeage nulle → équation du 1^{er} ordre → explique, entre autres, pourquoi la cinématique du 1^{er} ordre domine en pratique
- (b) → eqs. du 1^{er} ou du 2^{ème} ordre valides en remplaçant E et s par des quantités adaptées → plus compliqué

Discussion sur les différentes hypothèses (3)

- La présence de plus d'un piège (\rightarrow plusieurs valeurs de E possibles) se traduit par une « glow » courbe (GC) constituées de plusieurs GP \rightarrow



GC du LiF: Mg,Ti

- Une GC peut (généralement) être déconvoluée en plusieurs GP \rightarrow attention: les paramètres de chaque GP (E et s) n'ont pas la même signification que pour une simple GP

Efficacité de luminescence

- Modèle simple → description de la cinématique → pas d'indication sur l'intensité absolue de la luminescence
- L'efficacité intrinsèque η_i est définie comme le rapport de l'énergie émise sous forme de lumière visible durant le chauffage sur l'énergie absorbée durant l'exposition à un rayonnement ionisant
- Pour le calcul de η_i , on considère plusieurs étapes distinctes

Processus intervenant dans le calcul de η_i

1. L'absorption du rayonnement ionisant \rightarrow création de N paires $e^-h^+ \rightarrow N \propto 1/W$ et $W = \beta' E_g$ (avec $1 < \beta' < 4$)
2. Thermalisation et piégeage des porteurs de charge \rightarrow la fraction de porteurs capturés dans des pièges qui peuvent être thermiquement stimulée \rightarrow efficacité de piégeage: η_{tr}
3. Libération des porteurs des pièges (probabilité p), transport vers un centre de luminescence (efficacité S), excitation du centre de luminescence qui se désexcite par émission de photon (efficacité quantique Q)
4. Échappement du photons thermoluminescent du matériau (fraction d'échappement: η_{esc})

Efficacité intrinsèque

- Avec $h\nu$, l' E moyenne des photons TL émis \rightarrow

$$\eta_i = \frac{h\nu}{\beta' E_g} \eta_{trp} S Q \eta_{esc}$$

- Avec tous les rendements au maximum \rightarrow

$$\eta_i^{max} = \frac{h\nu}{\beta' E_g}$$

- Pour tous les matériaux utilisés comme TL $\rightarrow \eta_i^{max} \approx 13\% \rightarrow$
seulement une petite partie de l' E absorbée est convertie en e^-h^+

Efficacité intrinsèque et maximale

TL material	E_g (eV)	β'	$h\nu$		$\eta_{i,max}$ (%)	η_{exp} (%)
			(nm)	(eV)		
LiF:Mg,Ti	13.6	1.7	410	3.02	13	0.032–0.039
LiF:Mg,Cu,P						0.91
CaF ₂ :Dy(TLD-200)	12.6	1.8	480	2.58	11	4.1
CaF ₂ :Cu,Ho	12.6	1.8	390	3.18	14	
CaF ₂ :Tm						0.29
CaF ₂ :Mn						0.44
KMgF ₃ :Ce	12.6	2	360	3.44	14	
BeO	10.6	2	335	3.70	17	
CaSO ₄ :Dy	9.5	2	575	2.16	11	
CaSO ₄ :Mn						1.2
Al ₂ O ₃ :C	8.7	2.7	420	2.95	13	0.84
Li ₂ B ₄ O ₇ :Mn	8.5	2	620	2.00	12	0.3
C (diamond)	5.5	2.9	498	2.49	16	
Average					~ 13	~ 1

Paramètres influençant l'efficacité (1)

- Efficacité de piégeage: η_{tr} → les imperfections du cristal servent de pièges et en ajoutant des dopants → ↗ du nombre de pièges → augmentation de η_{tr} seulement pour une faible concentration de pièges ↔ quand la concentration de pièges est trop grande → distance entre les pièges faible → niveaux qui ne sont plus localisés → diminution de η_{tr} (« concentration quenching »)
- Pour S → quand on a une recombinaison directe avec un e^- thermiquement excité dans un piège $S \approx 1$

Paramètres influençant l'efficacité (2)

- Q est fortement dépendant de la température \rightarrow quand $T \nearrow \rightarrow Q \searrow$ (« thermal quenching ») (\rightarrow quand $\beta \nearrow \rightarrow Q \searrow$) \rightarrow avec C et W : paramètres de quenching:

$$Q(T) = \frac{1}{1 + C \exp(-W/kT)}$$

- Fraction d'échappement: $\eta_{esc} \rightarrow$ pour des monocristaux qui peuvent être transparent à leur propre émission: $\eta_{esc} \nearrow$ et pour des matériaux constitués de poudres ou d'agglomérats: $\eta_{esc} \searrow$ (ex: $\eta_{esc}(\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}) = 94\%$ et $\eta_{esc}(\text{BeO}) = 35\%$)

Dosimètres thermoluminescents (TLD)

- Les TLD les plus utilisés en dosimétrie sont:
 - LiF:Mg,Ti
 - LiF:Mg,Cu,P
 - Li₂B₄O₇:Mncar ils sont tissus-équivalent
- On utilise aussi, pour leur plus grande sensibilité:
 - CaSO₄:Dy
 - Al₂O₃:C
 - CaF₂:Mn
- Ils sont disponibles sous des formes variables (poudres, pastilles, rubans,...)

Caractéristiques générales des TLD

- Fading
- Sensibilité
- Limites de détection
- Réponse à la dose
- Réponse en énergie
- Recuit

Fading (1)

- Un TLD « parfait » est capable de stocker une information (les porteurs de charges piégés) pendant un temps infiniment long sans perte
- Cependant → toujours une probabilité que l'e⁻ s'échappe avant la lecture → fading → sous-estimation de la dose absorbée
- Différentes causes au fading

– Fading thermique: suivant la loi d'Arrhenius →

$$p = s \exp \left(-\frac{E}{kT} \right)$$

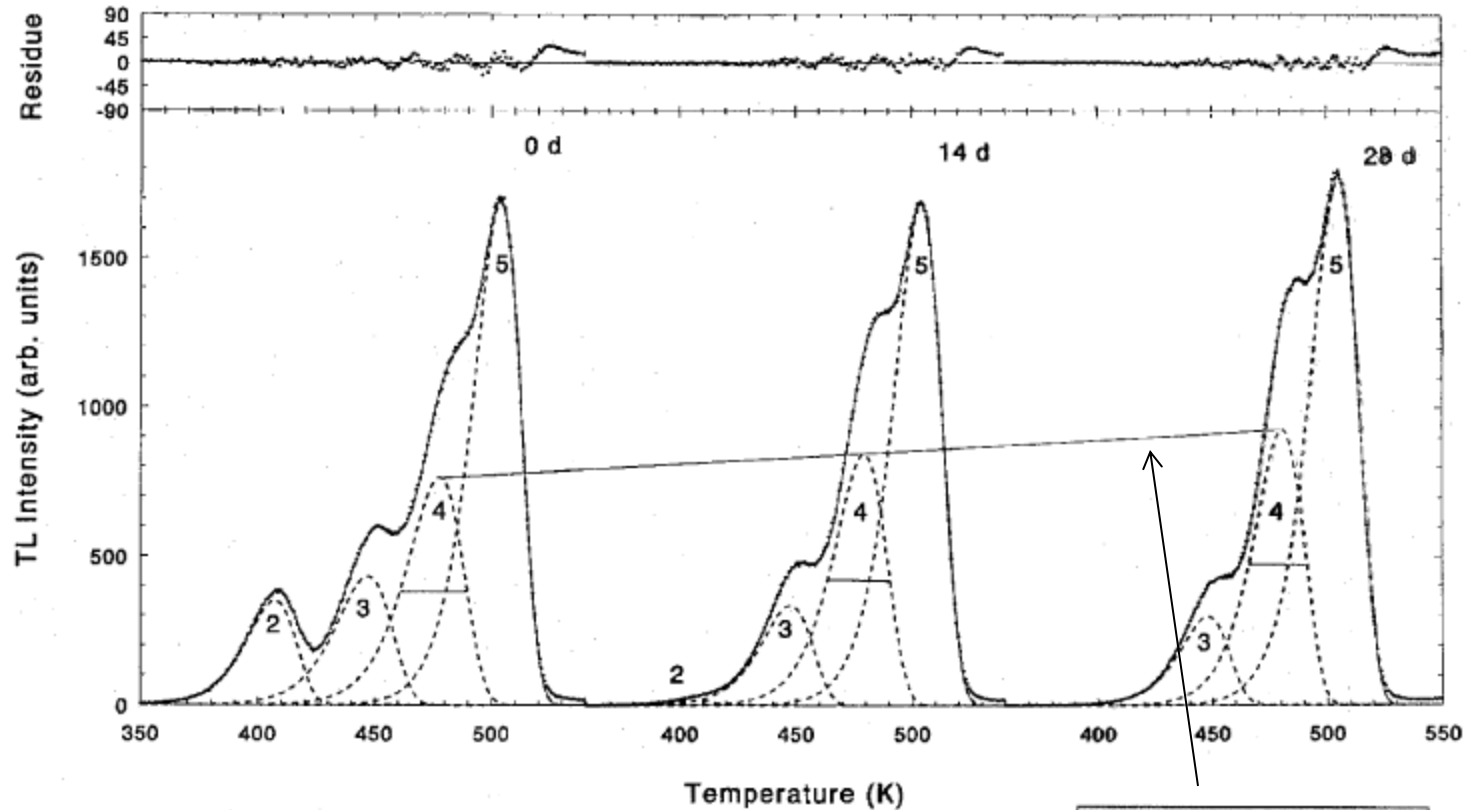
on en déduit la demi-vie du fading thermique →

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{p} = \frac{\ln 2}{s \exp \left(-\frac{E}{kT} \right)}$$

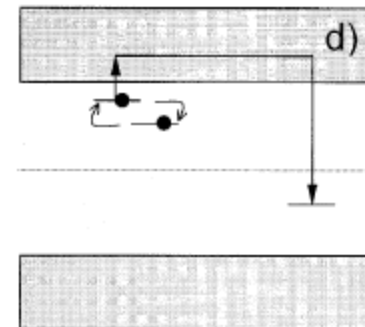
Fading (2)

- Fading optique: certains matériaux (CaSO_4 , CaF_2) sont très sensibles à la lumière (matériaux ayant la meilleure sensibilité évidemment) → doivent être stockés dans des récipients opaques
 - Fading quantique: effet tunnel entre le piège et le site de recombinaison
-
- Recommandation de la Communauté Européenne: fading < 5 % pendant la période de monitoring à 25°C

Fading (3)



GC pour un LiF:Mg,Ti après irradiation de 60 mGy de ^{60}Co mesuré après 0, 14 et 28 jours



Interactions entre défauts

Sensibilité

- Sensibilité d'un TLD: Intensité du signal intégré sur un temps donné par unité de dose absorbée et par unité de masse → dépend du TLD mais aussi du type de rayonnements, de l'énergie des rayonnements ainsi que du système de lecture (chauffage, détection de lumière,...)
- Généralement → on parle de sensibilité relative par rapport au LiF:Mg,Ti dans les mêmes conditions de rayonnement et d'analyse
- En général → rayonnements à haut transfert linéique d'énergie (α , neutron,...) donnent un signal < rayonnements à petit transfert linéique d'énergie (γ , β ,...)

Limites de détection

- Signifie à la fois: niveaux inférieur et supérieur de détections
- Niveau inférieur: plus petite dose absorbée qui peut être détectée avec un niveau de confiance spécifié → même ordre de grandeur que le bruit de fond
- Niveau supérieur: plus grande dose qui peut être détectée → limite maximale théorique: remplissage de tous les pièges → en pratique: la réponse à la dose doit être considérée

Réponse à la dose (1)

- Le signal du TLD est une fonction de la dose $\rightarrow F(D)$: réponse à la dose
- Idéalement, un TLD doit présenter une réponse à la dose linéaire sur une grande gamme de dose, du moins sur la plage de dose d'intérêt
- En pratique \rightarrow de nombreux effets non-linéaires existent pour tous les matériaux
- On définit l'indice de linéarité (ou fonction normalisée de réponse à la dose), $f(D)$:

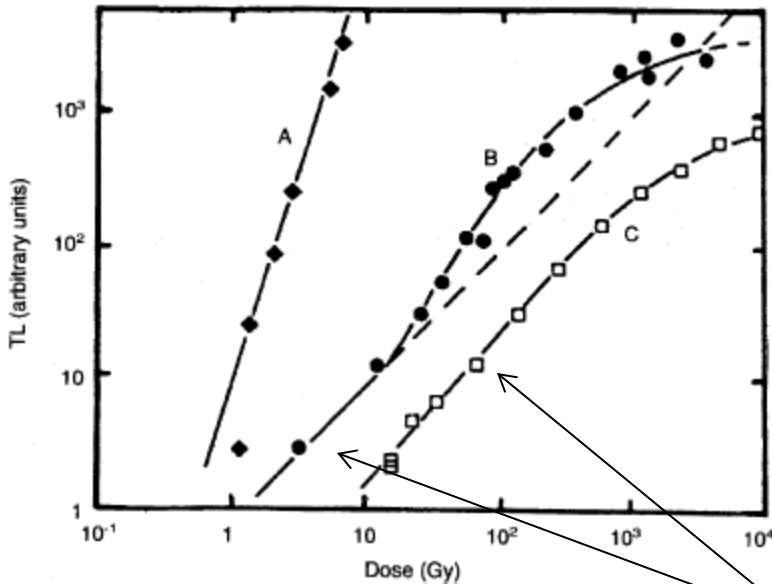
$$f(D) = \frac{F(D)/D}{F(D_1)/D_1}$$

avec D_1 , une dose faible pour laquelle la réponse est linéaire

Réponse à la dose (2)

On a:

- $f(D) = 1$: réponse linéaire (TLD idéal)
- $f(D) > 1$: réponse supralinéaire
- $f(D) < 1$: réponse sublinéaire (saturation des pièges)



- A. SiO₂: supralinéarité pour l'ensemble de la plage de dose
- B. LiF:Mg,Ti: comportement linéaire - supralinéaire
- C. CaF₂: Mn: très légère supralinéarité

Courbe en tiret: réponse linéaire

pente = 1 ou ≈ 1

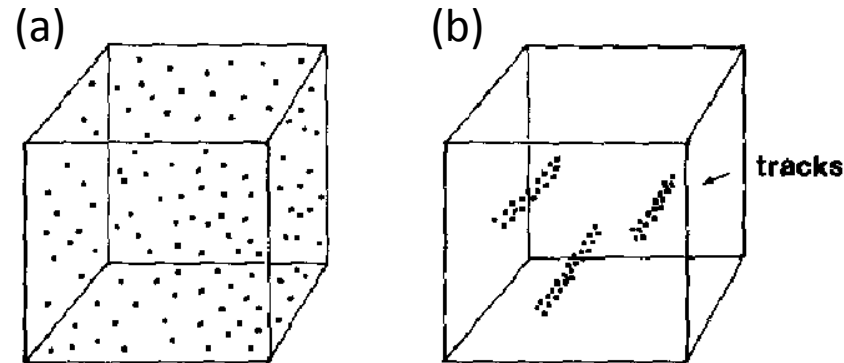
Explication de la supralinéarité (1)

- De nombreux paramètres influencent la supralinéarité: type de rayonnement, E du rayonnement, vitesse de chauffe, quantités de défauts,...
- Pour expliquer la supralinéarité → nombreux modèles (encore aujourd'hui) → Pour certains: processus critique durant l'absorption de l'E, pour d'autres: processus critique durant le chauffage
- Durant le chauffage → e^- relâchés des pièges → recombinent avec h^+ pour former de la lumière **ou alors** piégés dans des pièges profonds (PP) qui ne produisent pas de lumière → centre concurrent (CC)

Explication de la supralinéarité (2)

1. A petite dose \rightarrow grande distance entre le piège (P) et le centre de recombinaison (CR) \rightarrow probabilité élevée pour un e^- relâché par un P de rencontrer un PP avant un CR \rightarrow réponse en dose réduite
2. Quand dose \nearrow \rightarrow La distance entre P et CR \searrow mais aussi le nombre de PP \searrow (qui ont une plus grande probabilité d'être remplis \rightarrow or un PP doit être vide) \rightarrow la réponse en dose \nearrow (jusqu'à saturation des P)
3. En combinat 1 et 2 $\rightarrow f(D) > 1$ (SiO_2)
4. Si il n'y a pas de PP dans le matériau \rightarrow réponse en dose doit être plus élevée et une réponse linéaire est observée jusqu'à saturation (CaF_2 : Mn)
5. **La supralinéarité est une sous-estimation à petite dose plutôt qu'une surestimation à grande dose**

Supralinéarité \leftrightarrow transfert linéique d'énergie (1)



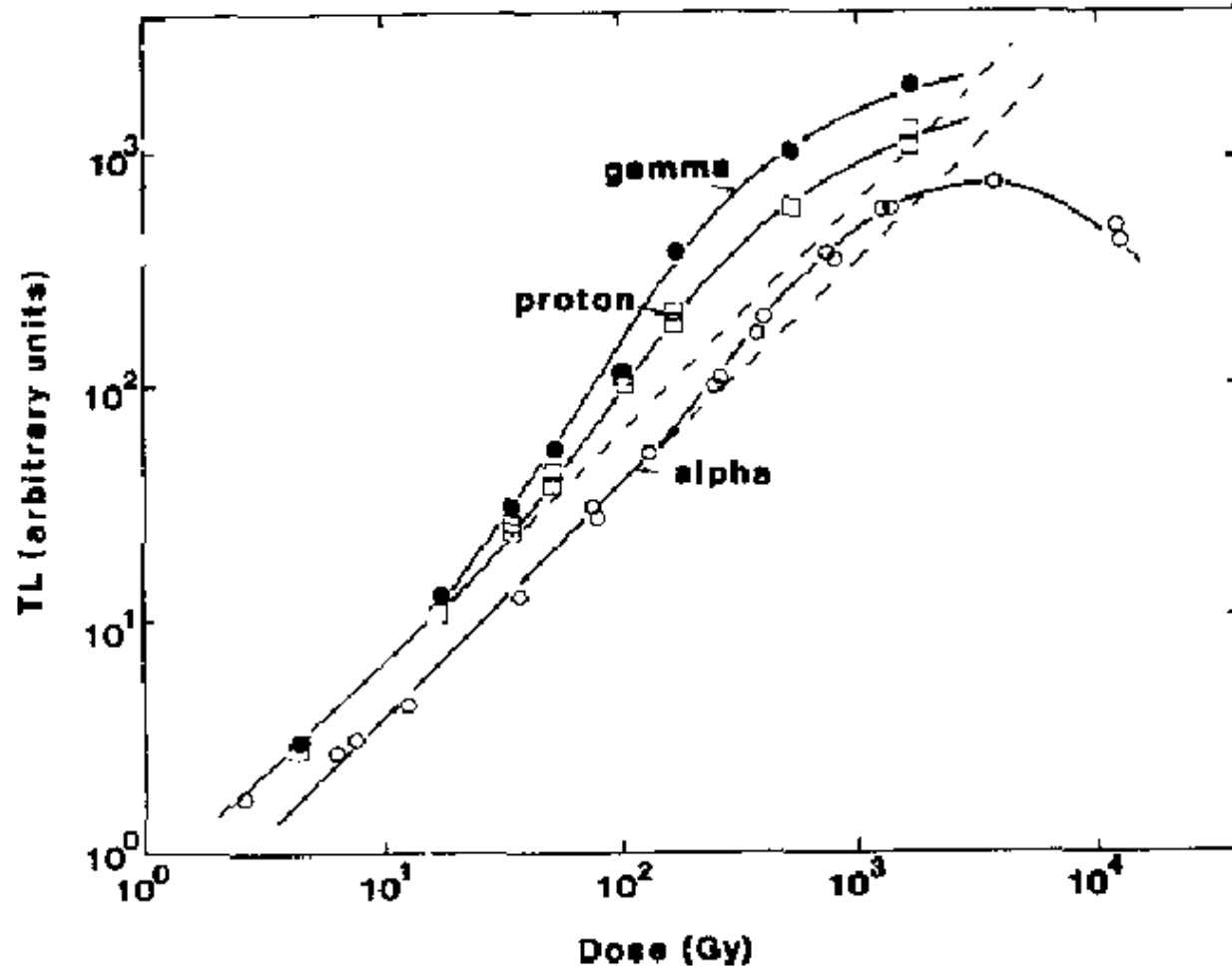
Distributions spatiales des paires P-CR pour (a) des γ de grande énergie (faible transfert linéique d'énergie) et pour (b) des particules chargées lourdes (grand transfert linéique d'énergie)

- Ions lourds: dose déposée dans une zone cylindrique de quelques dizaines de nm le long de la trajectoire de l'ion \rightarrow grande concentration de pièges remplis et peu de PP dans les cylindres de trace / faible concentration de pièges remplis et beaucoup de PP en dehors des cylindres de trace
- MFP de l' e^- relâché $<$ rayon du cylindre \rightarrow pas d'interaction avec un PP \rightarrow rencontre un CR \rightarrow lumière \rightarrow réponse linéaire
- Attention \rightarrow saturation plus rapide

Supralinéarité \leftrightarrow transfert linéique d'énergie (2)

- Pour des particules à faible transfert linéique d'énergie \rightarrow les e^- relâchés peuvent sortir de la zone de trace et rentrent dans une zone à forte concentration de PP \rightarrow perte de luminescence
- Quand la dose \nearrow \rightarrow la distance inter-trace \searrow \rightarrow l' e^- rencontre un CR avec une plus grande probabilité \rightarrow la réponse en dose \nearrow \rightarrow supralinéarité
- Quand transfert linéique d'énergie \searrow \rightarrow supralinéarité \nearrow

Supralinéarité \leftrightarrow transfert linéique d'énergie (3)

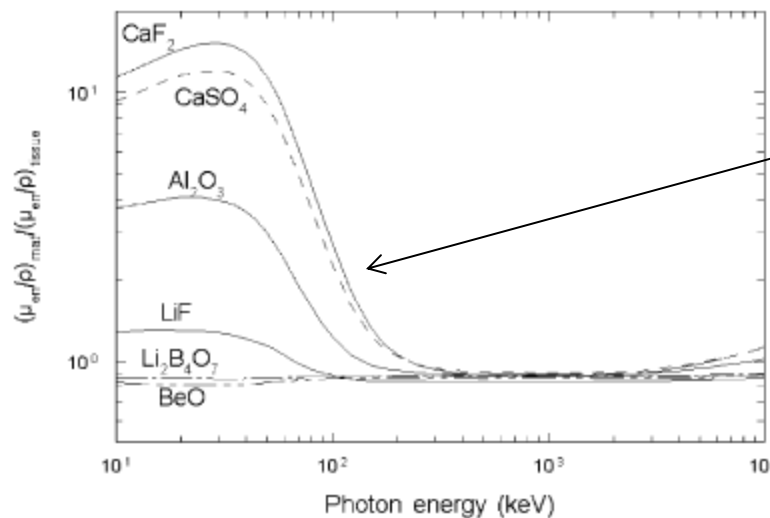


Réponse en énergie (1)

- Cas idéal → réponse en énergie égale (ou au moins proportionnelle) au tissu humain

$$\frac{D_{\text{TLD}}}{D_{\text{tissu}}} \stackrel{\text{CPE}}{=} \frac{(\mu_{en}/\rho)_{\text{TLD}}}{(\mu_{en}/\rho)_{\text{tissu}}}$$

- Rapport entre les coefficients d'absorption en énergie constant souhaitable



Effet photoélectrique
qui varie en $Z^3 - Z^4$

Réponse en énergie (2): Nombre atomique effectif

- Plutôt que de comparer la réponse suivant une courbe → utilité de définir un « nombre » permettant cette comparaison → nombre atomique effectif, Z_{eff} :

$$Z_{eff} = \sqrt[m]{\sum_i a_i Z_i^m}$$

avec a_i , la fraction du nombre total d'e⁻ associé à chaque élément de nombre atomique i

- m inclus entre 3 et 4 donne un accord raisonnable avec l'expérience → $m = 3.5$ est généralement choisi (choix empirique!)
- $Z_{eff} = 7.35$ pour les tissus (pour ce modèle-ci) → TLD avec $Z_{eff} \approx 7.35$ → TLD tissus-équivalent

Exemples de Z_{eff}

Material	Composition element: mass fraction in %	Z_{eff}
Polyethylene (C_2H_4) _n	H: 14.37, C: 85.63	5.53
Fat	H: 11.95, C: 63.72, N: 0.8, O: 23.23, Na: 0.05, P: 0.02, S: 0.07, Cl: 0.12, K: 0.03, Ca: 0.01	6.38
PMMA ($\text{C}_5\text{H}_8\text{O}_2$) _n	H: 8.05, C: 59.99, O: 31.96	6.56
BeO	Be: 36.0, O: 64.0	7.21
Li ₂ B ₄ O ₇	Li: 8.21, B: 25.57, O: 66.22	7.32
Tissue		
ICRU-sphere	H: 10.1, C: 11.1, N: 2.6, O: 76.2	7.35
ICRU-striated	H: 10.20, C: 12.3, N: 3.5, O: 72.90; Na: 0.08, Mg: 0.02, P: 0.02, S: 0.5, K: 0.3	7.63
ICRP-skeletal	H: 10.06, C: 10.78, N: 2.77, O: 75.48, Na: 0.075, Mg: 0.019, P: 0.18, S: 0.24, Cl: 0.079, K: 0.3, Ca: 0.003, Fe: 0.004, Zn: 0.005	7.65
Water H ₂ O	H: 11.19, O: 88.81	7.51
Air	C: 0.0124, N: 75.53, O: 23.18, Ar: 1.28	7.77
LiF	Li: 26.75, F: 73.25	8.31
Al ₂ O ₃	Al: 47.08, O: 52.93	11.28
SiO ₂	O: 53.3, Si: 46.7	11.75
Compact bone	H: 4.72, C: 14.43, N: 4.2, O: 44.61, Mg: 0.22, P: 10.5, S: 0.32, Ca: 20.99, Zn: 0.01	13.59
CaSO ₄	O: 47.0, S: 23.6, Ca: 29.4	15.62
CaF ₂	Ca: 51.33, F: 48.67	16.90

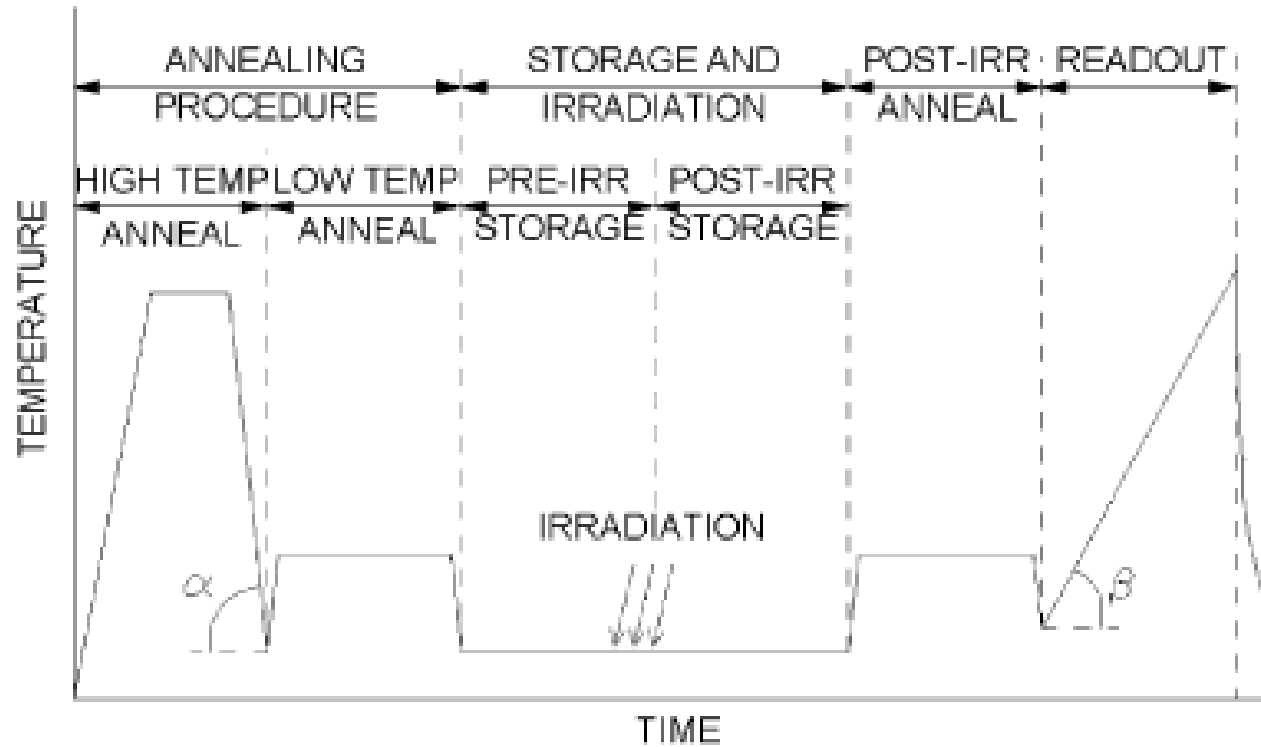
Z_{eff} – fading – sensibilité – limites pour \neq TLD

TLD type	Effective atomic number Z_{eff}	Main peak ($^{\circ}\text{C}$)	Emission maximum (nm)	Relative sensitivity	Fading (at 25°C) for storage in dark	Useful dose range
LiF:Mg,Ti	8.2	200	400	1	5%/year	20 μGy -10 Gy
LiF:Mg,Cu,P	8.2	210	400	25	5%/year	0.2 μGy -10 Gy
$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu}$	7.4	205	368	2	10%/2 months	10 μGy - 10^3 Gy
$\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$	8.4	190	490	10	4%/month	5 μGy -50 Gy
$\text{Mg}_2\text{SiO}_4\text{:Tb}$	11	200	380-400	40	negligible	10 μGy -1 Gy
$\text{CaSO}_4\text{:Dy}$	15.3	220	480, 570	30	1%/2 months	2 μGy -10 Gy
$\text{CaSO}_4\text{:Tm}$	15.3	220	452	30	1-2%/2 months	2 μGy -10 Gy
$\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$	10.2	190	420	60	5%/year	1 μGy -10 Gy

Recuit

- Un des intérêts des TLD → réutilisation
- Pour avoir toujours les mêmes propriétés → procédure de recuit → maintenir le TLD à une T élevée → le refroidir jusqu'à T ambiante à une vitesse donnée, α → suivi d'un recuit à basse T
- Utilité:
 1. Vider les pièges non-complètement vidés lors de la lecture
 2. Rétablir l'équilibre thermodynamique des défauts
 3. Vider les pièges profonds (non utilisés lors de la lecture) qui peuvent influencer la sensibilité du TLD
- Parfois → recuit à basse T après l'irradiation → élimination des GP de basse T à haut fading

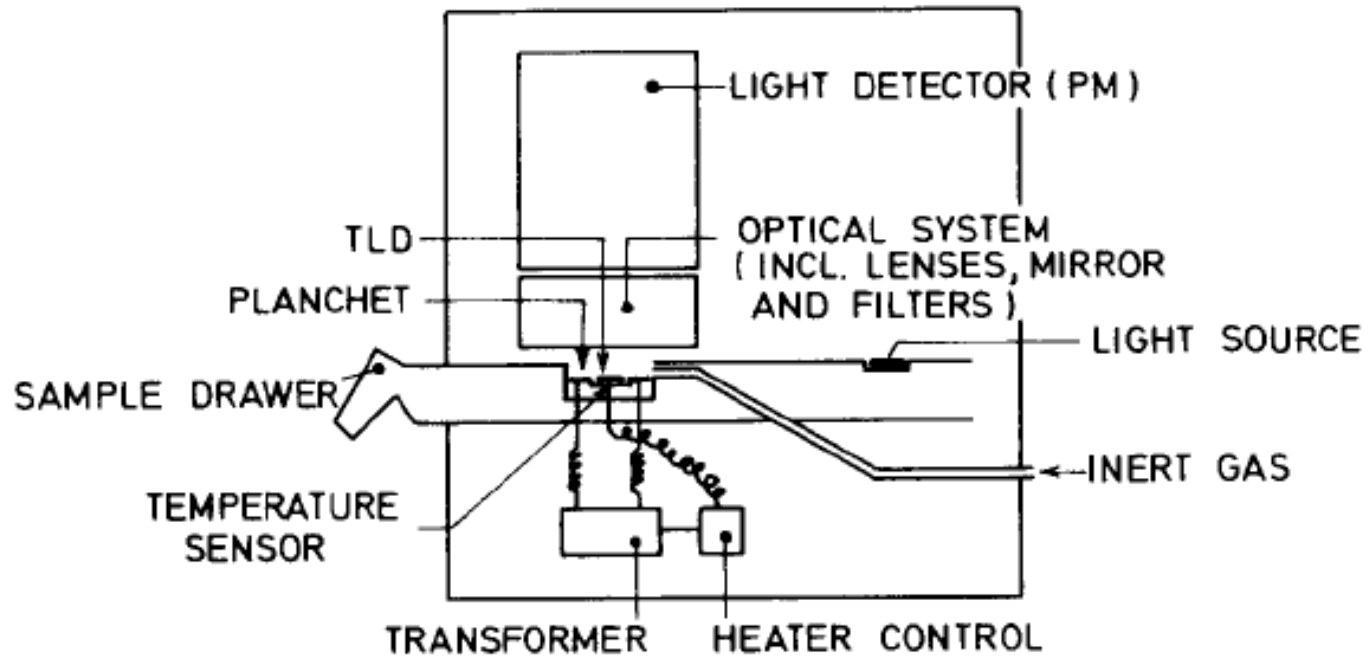
Procédure de recuit



TLD en pratique

- Le TLD est placé dans un support qui est porté par la personne qui doit être contrôlée
- Après un temps prédéterminé → dépouillement du signal
- Le TLD est chauffé → luminescence mesurée à l'aide d'un photomultiplicateur → circuit d'amplification classique → voltmètre
- La chaîne est calibrée à l'aide de la mesure de l'intensité lumineuse avec une source luminescente soumise à une dose connue
- Après → recuit à haute T° (vider les pièges profonds) → réutilisation (dépend des TLD)

Lecture du TLD



Exemples de TLD

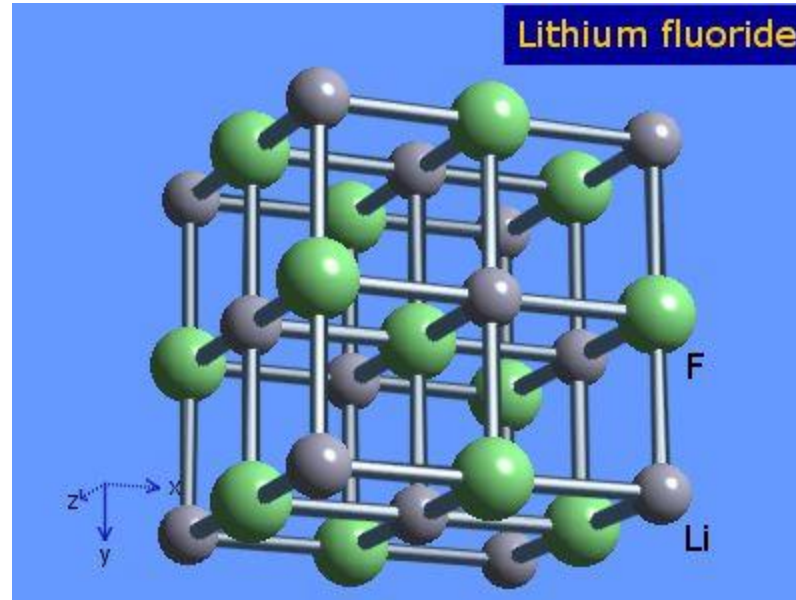
Les 2 TLD utilisés actuellement ou ayant été utilisés à l'ULB

- LiF: Mg,Ti (TLD-100)
- CaSO₄: Dy (TLD-900)

Référence:

S.W.S. McKeever, M. Moscovitch, P.D Townsend,
Thermoluminescence dosimetry materials: Properties and use
(Nuclear technology Publishing) 1995.

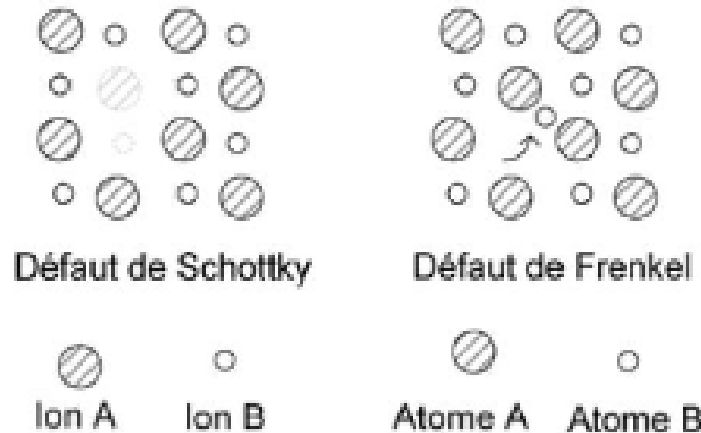
LiF: Mg,Ti: Structure du LiF



- LiF consiste en 2 réseaux FCC (un pour Li^+ et un autre pour F^-) s'interpénétrant
- Les défauts thermodynamiques consistent en défauts de Shottky et de Frenkel

LiF: Défauts thermodynamiques

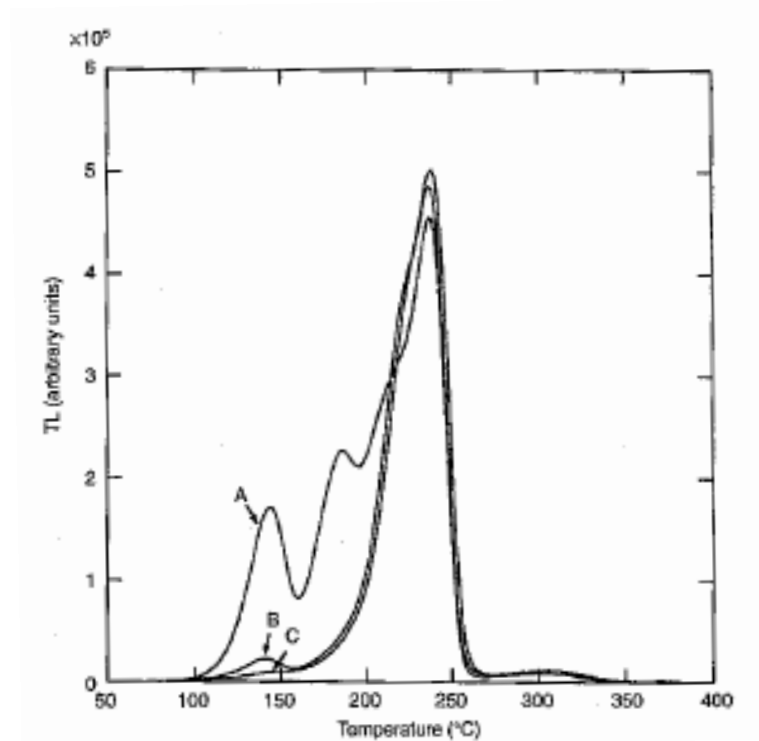
- Défaut de shottky: paire de vacances Li^+ et F^-
- Défaut de Frenkel: paire vacance-interstice Li^+ ou F^-



Impuretés ajoutées: Mg

- Mg^{2+} remplace un Li^+ \rightarrow neutralité de la charge préservée par la présence d'un excès de vacances Li^+
- Interaction coulombienne entre l'impureté et une vacance \rightarrow paire impureté-vacance ($\text{Mg-Li}_{\text{vac}}$): dipôle
- A T ambiante \rightarrow énergie libre du cristal minimale pour l'association de dipôles en « cluster » \rightarrow le plus important: trimère (cluster de 3 dipôles) car on peut montrer que la sensibilité du TLD est maximale pour du Mg sous forme de trimère \rightarrow les trimères constituent les pièges
- Processus: recuit à 400 °C pendant une heure \rightarrow formation de dipôles \rightarrow recuit à 80 °C pendant 24h \rightarrow formation de trimères
- Attention: pour $T < 250$ °C \rightarrow précipitation sous forme de MgF_2 \rightarrow réduction de la sensibilité à T ambiante

GC en fonction du recuit



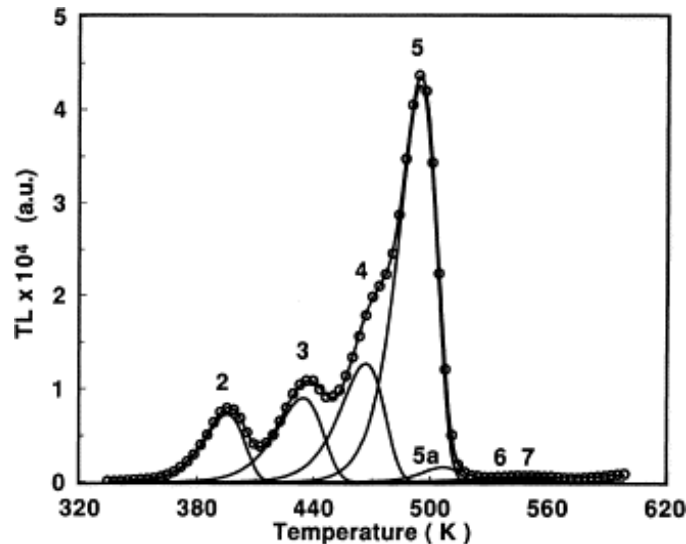
- A. Recuit à 400 °C (1h) suivi d'un retour rapide à T ambiante
- B. Recuit à 400 °C (1h) suivi d'un recuit à 80°C (24h)
- C. Recuit à 400 °C (1h) suivi d'un recuit à 100°C (2h)

Impuretés ajoutées: Ti

- Substitution du Titane à la place du Li^+ sous la forme de Ti^{3+} ou de Ti^{4+}
- Différents mécanismes pour conserver la neutralité de la charge \rightarrow formation de $\text{Ti}^{4+}(\text{O}^{2-})_3$ mais surtout de $\text{Ti}(\text{OH})_n \rightarrow$ responsables de l'émission à 3.01 eV (412 nm) \rightarrow essentiels pour la luminescence
- Les $\text{Ti}(\text{OH})_n$ constituent les centres de luminescence
- Autre mécanisme \rightarrow liaison avec du Mg pour former des $\text{Mg}(\text{OH})_n \rightarrow$ réduisent l'émission TL \rightarrow rôle conflictuel entre les $\text{Ti}(\text{OH})_n$ et les $\text{Mg}(\text{OH})_n \rightarrow$ concentration des Mg et Ti est prépondérante et doit être scrupuleusement contrôlée

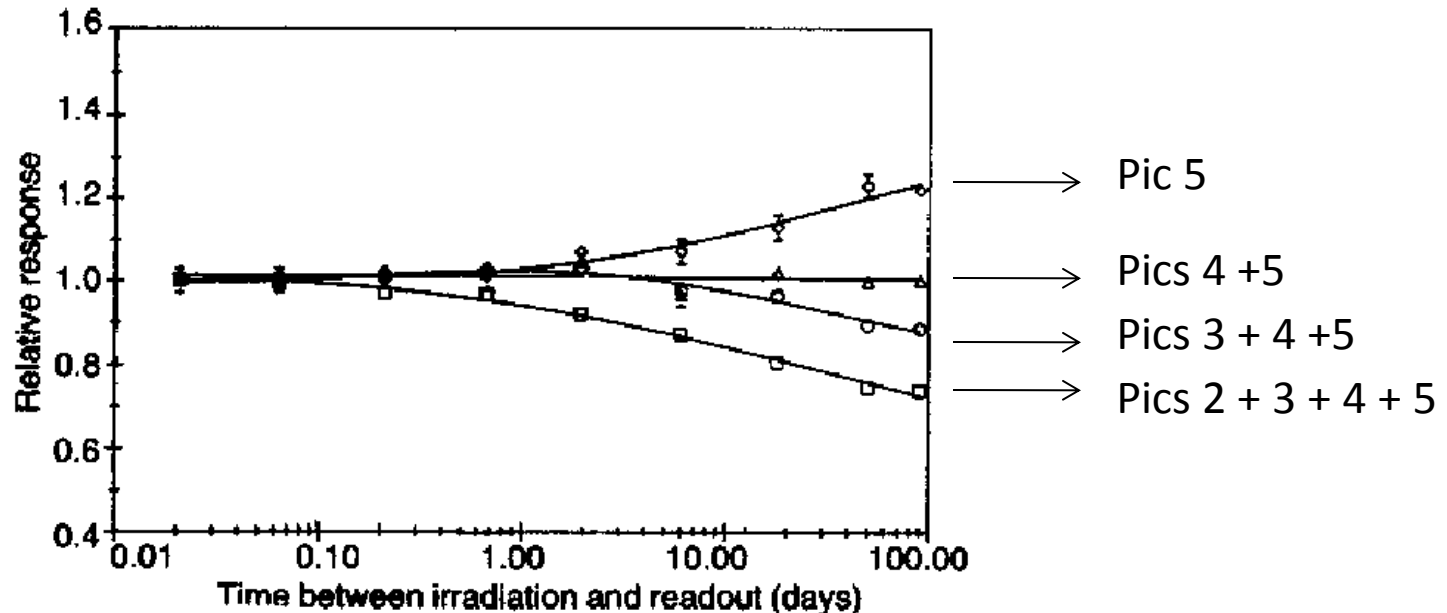
Effet global des impuretés: mécanismes d'émission

- Les pièges responsables du pic principal en dosimétrie sont les Mg-Li_{vac} trimères
- Le Mg du défaut est spatialement corrélé avec un Ti(OH)_n
- Le Ti(OH)_n constitue un centre de luminescence → Pic 5
- Les autres combinaisons des défauts impliquent des pics supplémentaires dans la GC



Fading pour le LiF: Mg,Ti (1)

- Le fading dépend d'un grand nombre de paramètres: T de stockage, procédé de recuit, type de radiation, région d'intégration de la GC
- Les pics aux « petites » T (pics 2, 3, 4) → fading plus important
→ fading dépend des pics considérés dans l'intégrale de la GC



Fading pour le LiF: Mg,Ti (2)

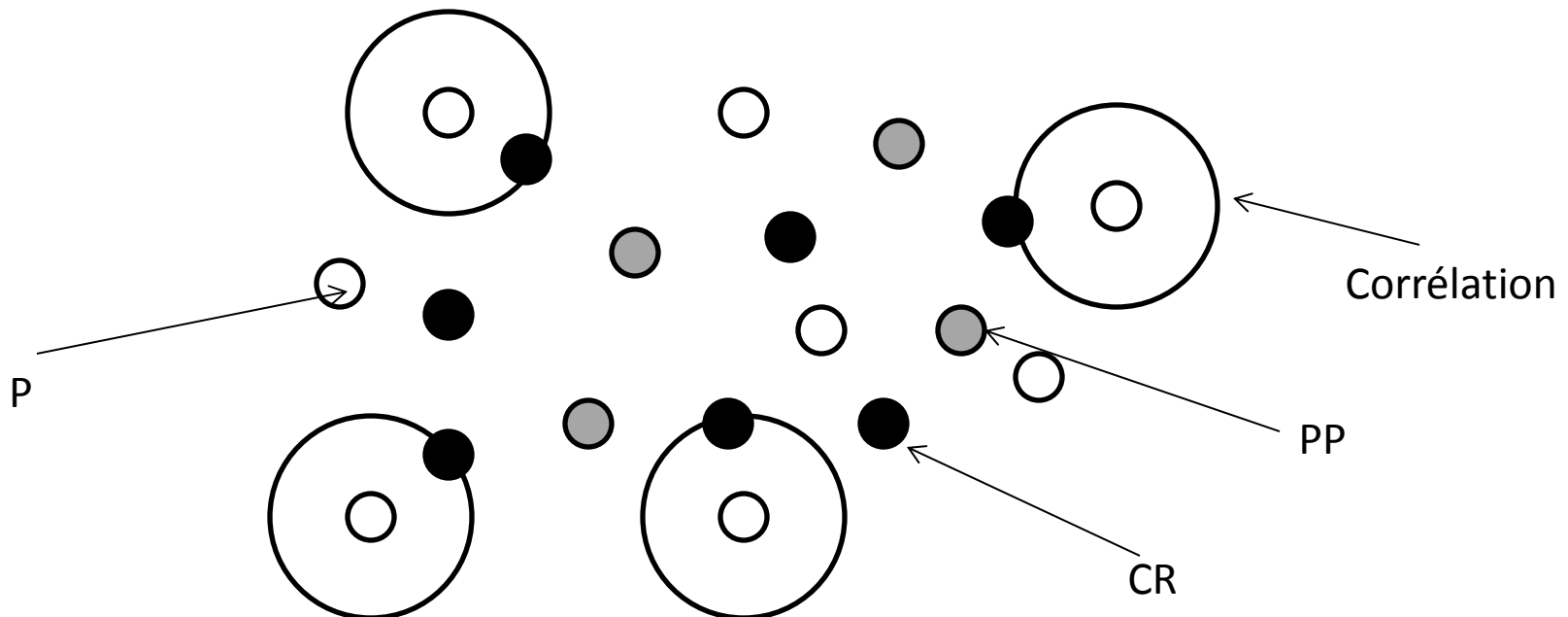
- Sensible à la lumière → 11% de perte de luminescence ont été observé après 3h d'exposition au soleil (9000 lux)
- Cela reste une faible sensibilité à la lumière

Sensibilité du LiF: Mg,Ti

- LiF: Mg,Ti est considéré comme le standard de sensibilité
- Sensibilité dépend d'un grand nombre de paramètres → ≠ LiF: Mg,Ti auront ≠ sensibilités
- Certaines firmes maintiennent des TLD dans des conditions contrôlées → considérés comme standards
- Variations de $\pm 15\%$ entre les LiF: Mg,Ti disponibles dans le commerce

Réponse à la dose du LiF: Mg,Ti (1)

- $D < 1 \text{ Gy}$ → réponse linéaire du LiF: Mg,Ti
- $1 \text{ Gy} < D < 1000 \text{ Gy}$ → réponse supralinéaire
- $D > 1000 \text{ Gy}$ → réponse sublinéaire (région de saturation)
- Corrélation spatiale entre le Mg-Li_{vac} trimère et le Ti(OH)_n →



Réponse à la dose du LiF: Mg,Ti (2)

- Quand CR et P sont corrélés \rightarrow pas d'interaction avec un PP \rightarrow réponse linéaire
- Quand la dose est faible \rightarrow proportion de CR et P corrélés importante \rightarrow réponse linéaire
- Quand la dose \nearrow \rightarrow contribution des CR et P non-corrélés \nearrow (car \nearrow non-linéairement)
- Pour une dose donnée \rightarrow contribution non-linéaire domine \rightarrow supralinéarité

Réponse à la dose du LiF: Mg,Ti (3)

- Utile de déterminer un facteur de correction pour la supralinéarité (expression phénoménologique)
- Expérimentalement on montre que dans la région supralinéaire →

$$f(D) = aD + bD^2 \Rightarrow f(d) = A + BD$$

- Avec $K = F(D_1)/D_1$ (dose faible pour laquelle la réponse est linéaire) →

$$\frac{F(D)/D}{K} = A + BD$$

- En supposant $A = 1$ (en accord avec les résultats expérimentaux) →

$$D = \frac{F(D)}{K(1 + BD)}$$

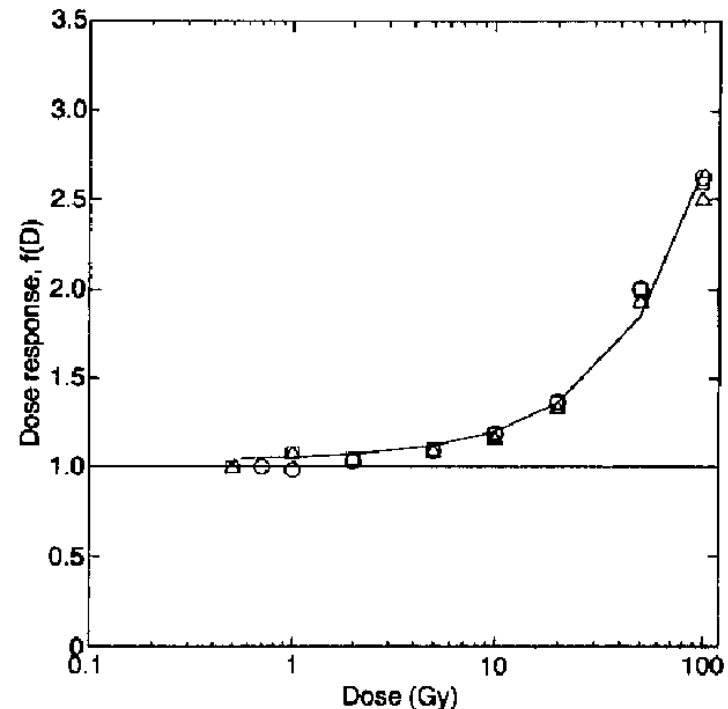
Réponse à la dose du LiF: Mg,Ti (4)

- En supposant $BD < 1$ (avec $B \approx 0.015 \rightarrow D < 65 \text{ Gy}$) \rightarrow

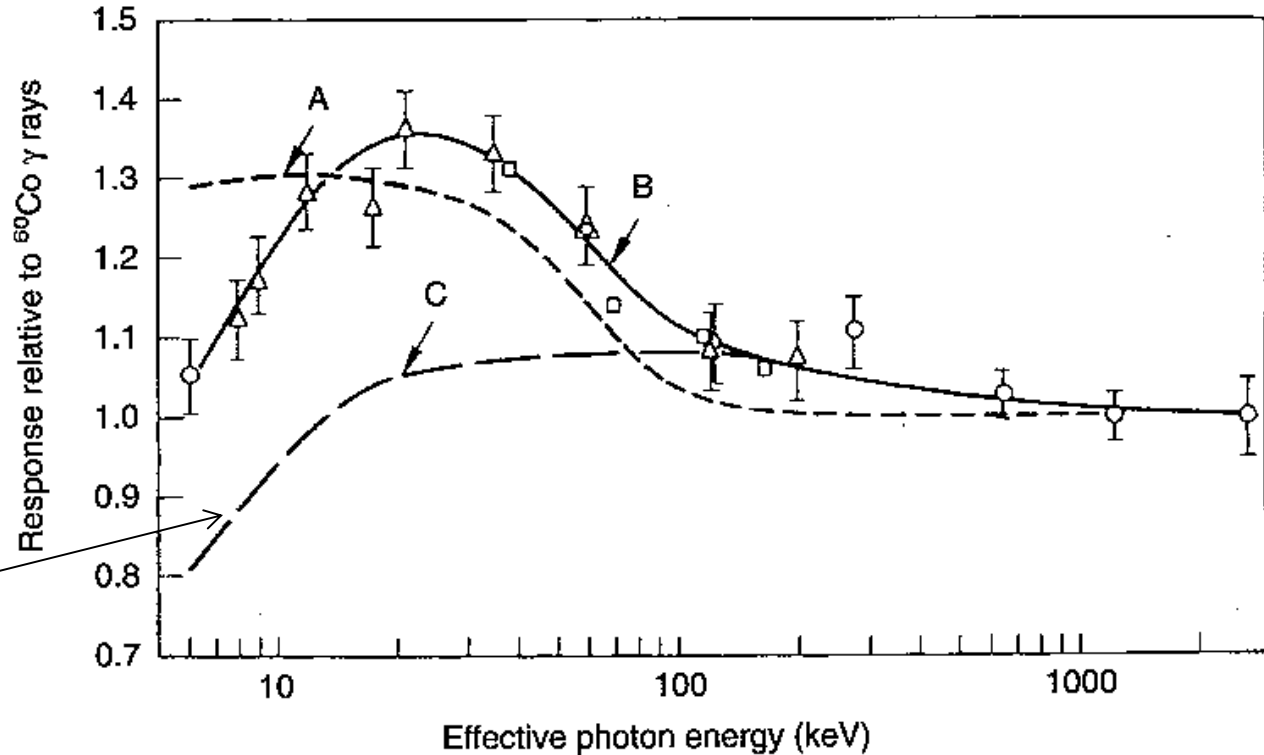
$$D = \frac{F(D)(1 - BD)}{K}$$

- En résolvant pour D avec $D_0 = F(D)/K \rightarrow D = D_0(1 + D_0B)^{-1}$

Courbe de réponse du LiF: Mg,Ti irradié par les γ du ^{60}Co irradié à \neq profondeurs dans du plastique équivalent eau



Réponse en énergie du LiF: Mg,Ti

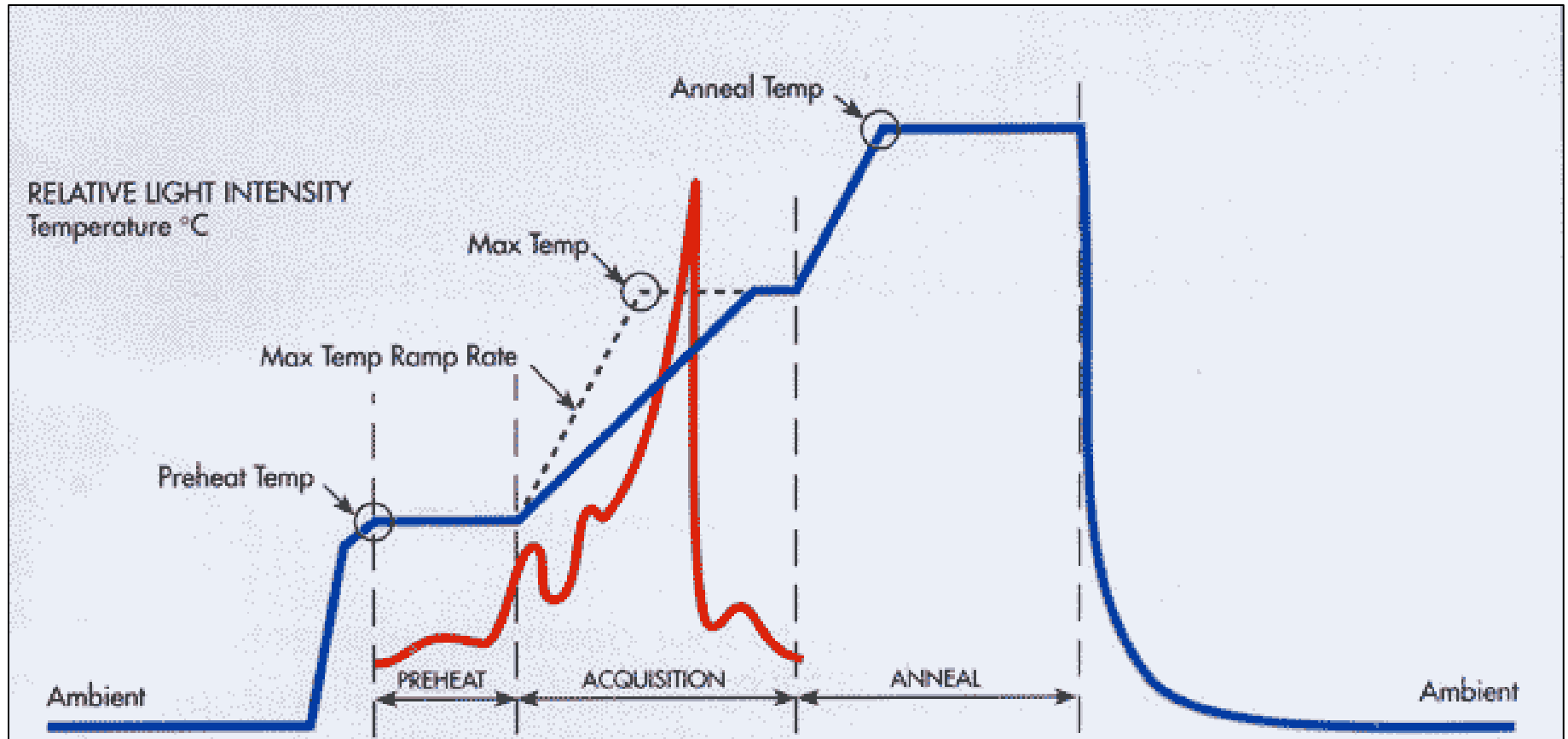


↘ de l'efficacité du TLD pour un transfert linéique d'E qui ↗

- A. Dose absorbée dans du LiF par unité de X calculée via le rapport des coefficients d'absorption massique en E du LiF et de l'air
- B. Réponse du LiF: Mg,Ti par unité de X (résultat expérimental)
- C. Réponse du LiF: Mg,Ti par unité de Dose $\rightarrow B/A$

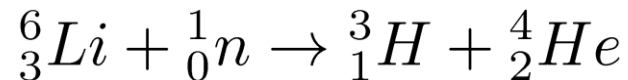
En considérant $Z_{\text{eff}}(\text{LiF}) = 8.2 \rightarrow$ tissu-équivalent

Procédure de lecture



Sensibilité aux neutrons

- Le LiF présente en outre l'avantage d'être composé à l'état naturel de 92.6 % de Li^7 et de 6.4 % de Li^6 → Li^6 a une très grande section efficace pour les neutrons thermiques (945 barns) → indique la présence de neutrons selon:



- Li^7 a une section efficace négligeable pour ces mêmes neutrons → mesure de tout ce qui n'est pas neutrons (électrons, photons)
- Par simple différence → mise en évidence d'une présence de neutrons

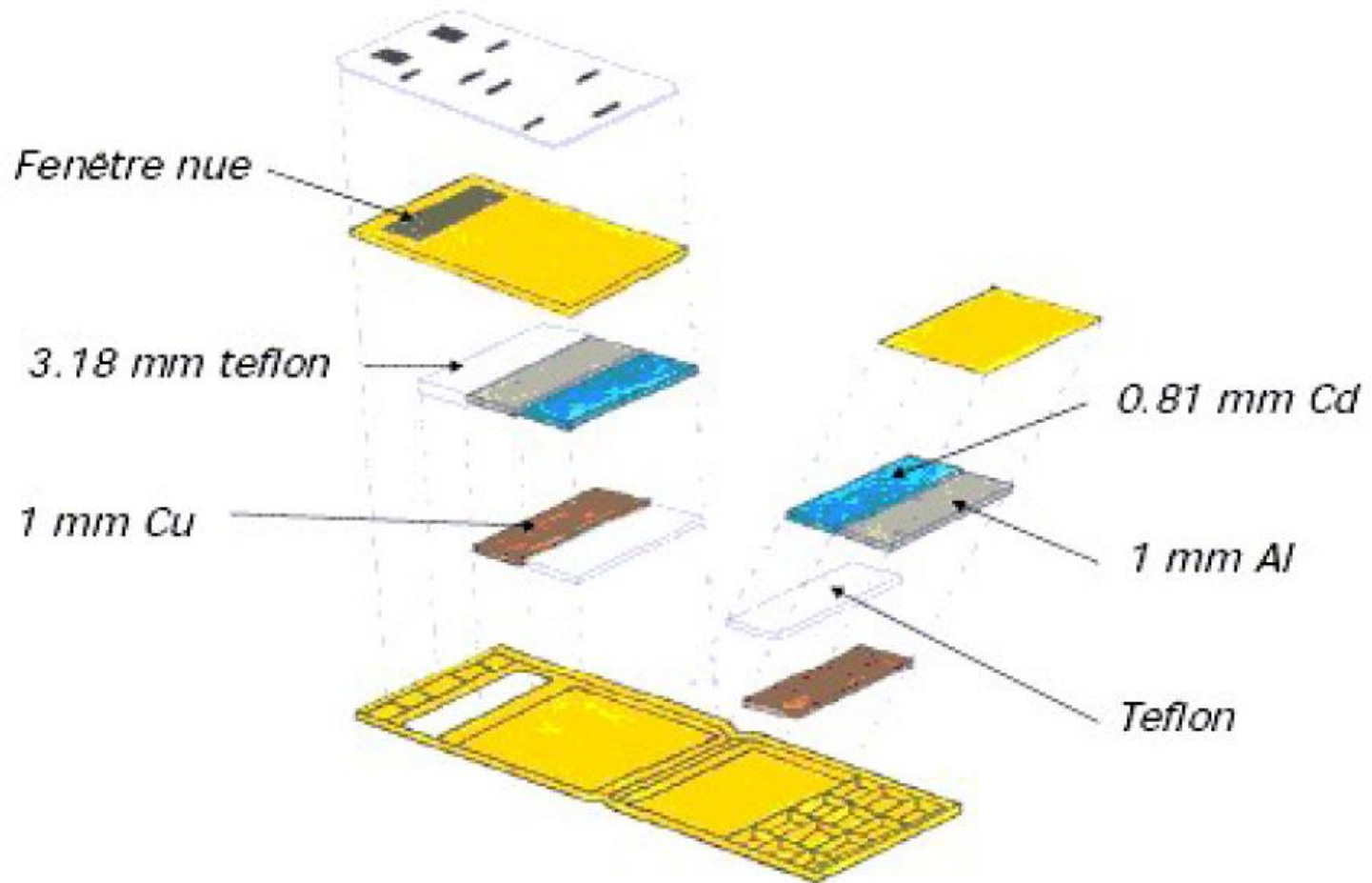
Résumé pour le LiF: Mg,Ti

- Tissu-équivalent ($Z_{\text{eff}}(\text{LiF}) = 8.2$)
- Indépendant en énergie entre ~ 100 keV et 1.3 MeV pour des rayonnement γ
- La luminescence principale se situe à ≈ 500 K pour un maximum du spectre d'émission situé à 412 nm
- La réponse du LiF en fonction de la dose absorbée est linéaire jusqu'à une dose γ d'au moins 5 Gy
- Limite inférieure de dose $\approx 20 \mu\text{Gy}$
- Bonne stabilité à long terme de l'information
- Réutilisation optimale

Dosimètre LiF: Mg,Ti en pratique (ULB - ancien) (1)

- Les dosimètres se présentent sous forme d'une feuille constituée d'un mélange téflon-fluorure de lithium
- La matière sensible est du LiF: Mg,Ti en concentration de 15% → le téflon sert de support mécanique pour le LiF et d'isolant thermique entre les différentes plages de lecture
- En plus de la plage de lecture, le dosimètre possède une plage de back-up (utilisée en cas d'incident de lecture ou en cas de confirmation de dose importante)
- Le boîtier est constitué de quatre zones distinctes possédant différents filtres permettant une analyse du type de rayonnements incidents ainsi que de son intensité →
 - zone I : 2.4 mm téflon (plastique) + 0.8 mm Cd
 - zone II : 1 mm Cu + 1 mm Al
 - zone III : 3.2 mm téflon
 - zone IV : fenêtre nue

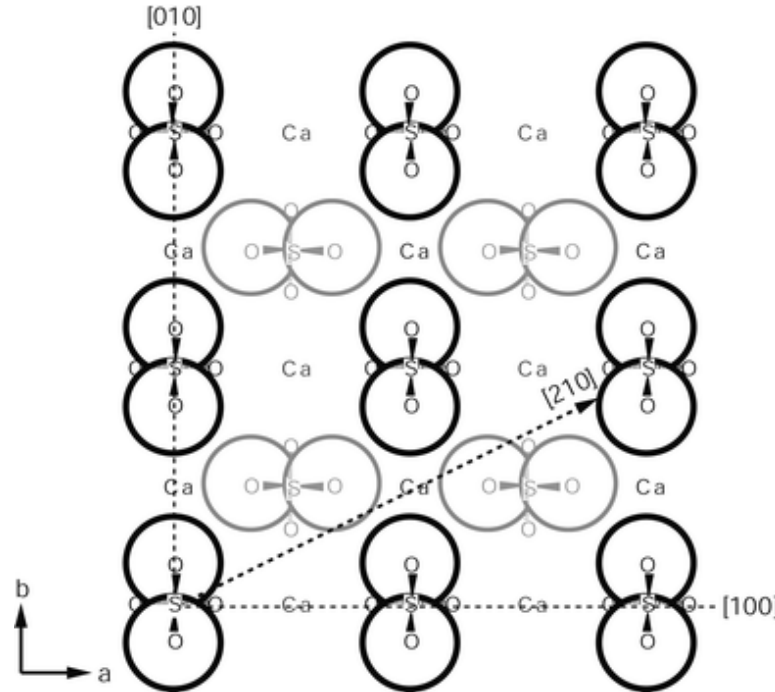
Dosimètre LiF: Mg,Ti en pratique (ULB - ancien) (2)



Dosimètre LiF: Mg,Ti en pratique: Interprétation des résultats

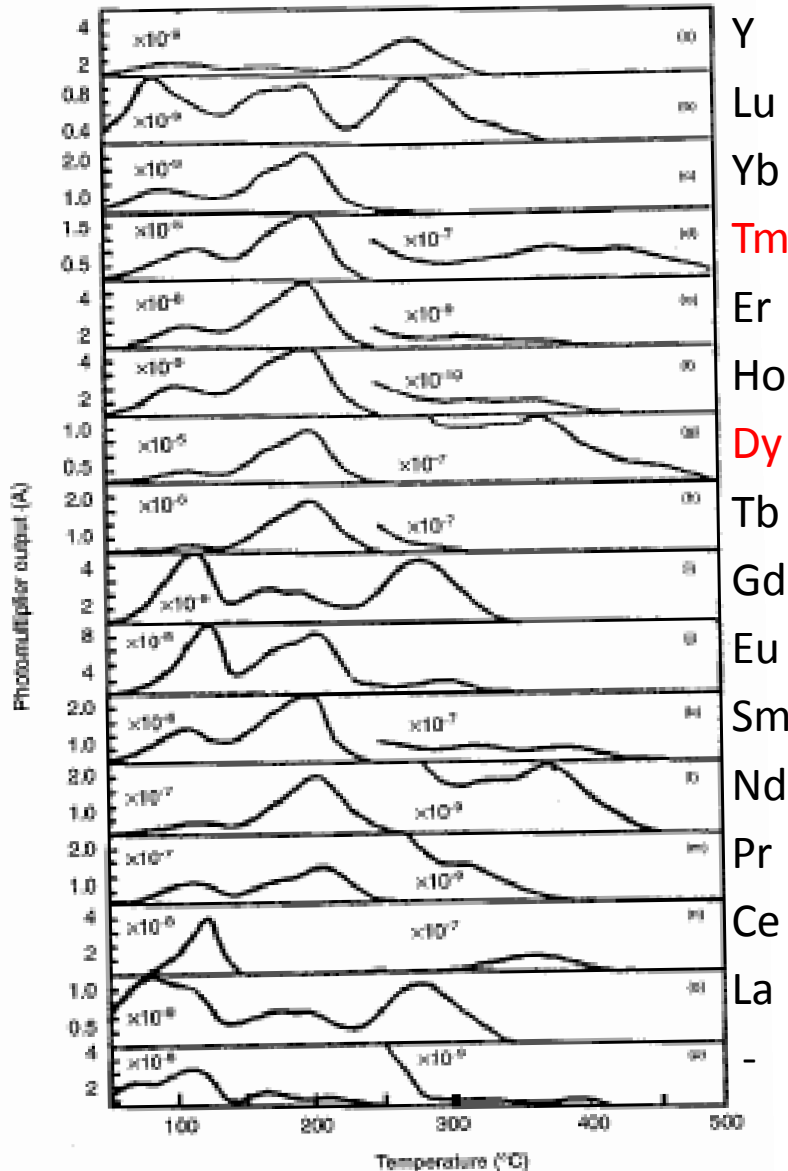
- Zone sous écran téflon/Cd → dosimétrie des neutrons
- L'écran Cu/Al permet une discrimination entre les rayons γ et les rayons X généralement utilisés dans le domaine médical ($20 \text{ keV} < E < 60 \text{ keV}$) → la dose absorbée sous cette fenêtre est due à des γ de grande E (en première approximation)
- Ecran téflon → cette fenêtre doit servir à discriminer les rayons β et aussi à établir un équilibre électronique suffisant pour des γ d'E plus élevée
- La dose en profondeur sera le résultat combiné des deux zones Cu/Al et téflon
- La fenêtre nue a en pratique une courbe de réponse pratiquement identique à celle de la fenêtre plastique pour des γ avec $E > 20 \text{ keV}$ → cette fenêtre permet la détection de γ avec $E < 10 \text{ keV}$ et de rayonnements β (zone fragile)

CaSO₄:Dy: Structure du CaSO₄



- Structure orthorhombique et bcp plus compliquée que LiF
- *(...) efforts have been focused on making an efficient material, and this has been achieved. Understanding the mechanisms has been of secondary importance. Indeed for a material of such great complexity (...), it is well beyond the scope of current condensed matter scientists.*

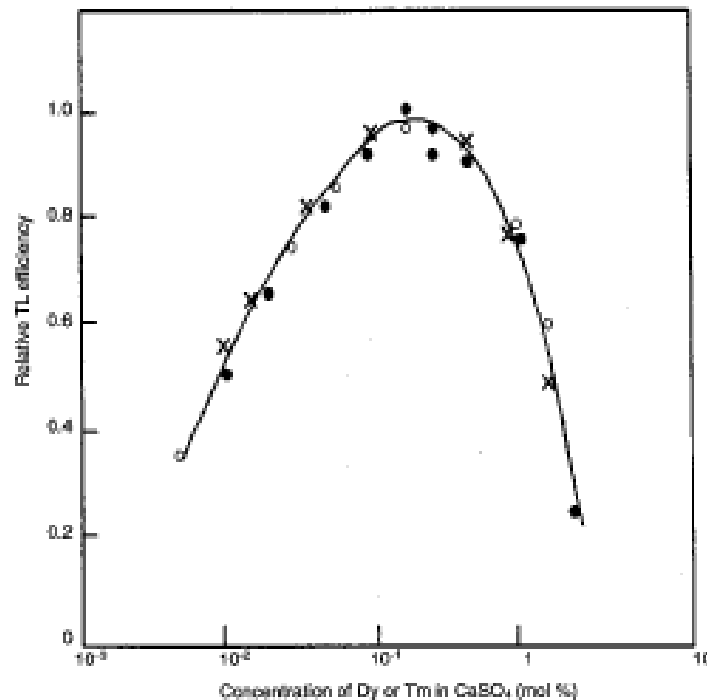
Impuretés ajoutées: impuretés primaires



- Les terres rares choisies comme impuretés primaires donnent une bonne sensibilité, limitent pics aux faibles T° et induisent une bonne stabilité aux alentours de 200 °C
- Dysprosium (Dy) et Thulium (Tm) donnent la meilleure sensibilité

Sensibilité en fonction de la quantité de Dy

- Chaque site Dy (ou Tm) nécessite un volume indépendant du cristal → si ces volumes se superposent (grande concentration d'impuretés) → sensibilité \searrow
- Il existe donc une concentration optimale d'impuretés



Impuretés ajoutées: impuretés secondaires

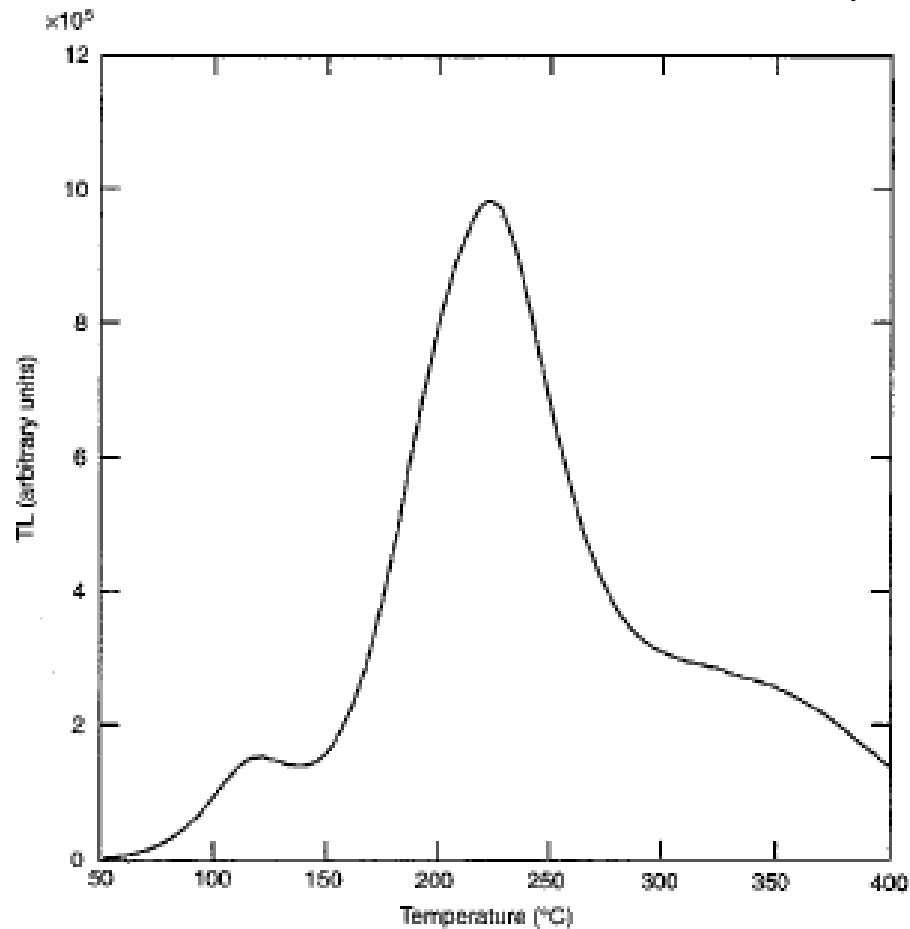
- Dy^{3+} remplace un ion Ca^{2+} → compensation nécessaire pour conserver la charge → ≠ mécanismes ont été envisagés:
 1. Dy^{3+} compensé par une impureté secondaire délibérément ajouté au TLD (hydrogène ou alcalin) → de bons résultats ont été obtenus avec du Na^+
 2. Une paire de Dy^{3+} associée avec une vacance Ca^{2+}
 3. Remplacement de l'oxygène par de l'azote comme impureté secondaire
- En pratique → il « semble » qu'il y ait combinaison des 3

Tailles des grains de CaSO₄

- CaSO₄ est généralement obtenu sous forme polycristalline de taille de grain dépendant du processus de fabrication
- Plus la taille de grain \nearrow \rightarrow plus la sensibilité \nearrow \leftrightarrow les grains plus grands contiennent un plus grand % d'impuretés
- Attention \rightarrow si la taille des grains \nearrow trop \rightarrow devient cassant

Taille des grains (μm)	Sensibilité relative
100-200	1.00
63-125	0.82
45-152	0.77
63-100	0.74
45-100	0.73
0-100	0.62
45-63	0.69
0-63	0.60
0-45	0.47

Exemple de GC pour le CaSO_4 : Dy



- Pic principal à 220 °C
- Très dépendant des conditions de recuit et des impuretés secondaires (ici faible quantité de Na)

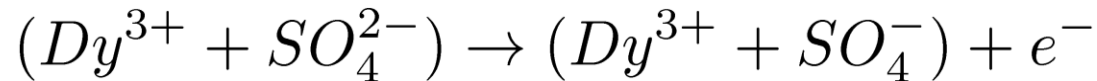
Mécanismes d'émission (1)

1. Une possibilité est que, sous irradiation →



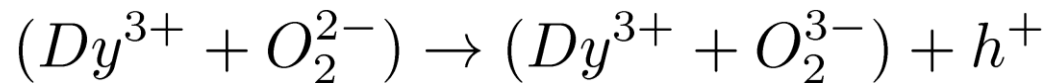
ensuite, la recombinaison du Dy^{2+} et du h^+ donne la lumière

2. Autre possibilité: considérer un site plus « large » →



Recombinaison → lumière

3. Ou encore →

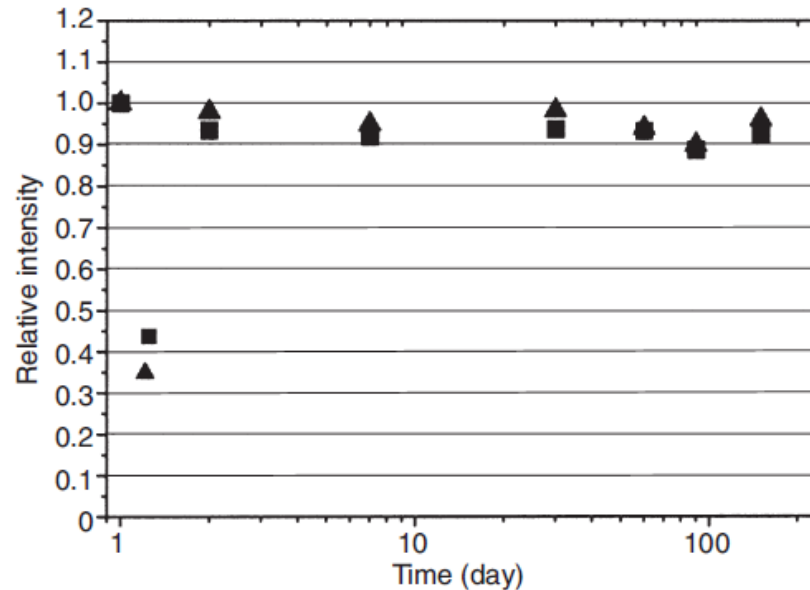


Mécanismes d'émission (2)

4. Et on ne peut pas ignorer la possibilité d'une combinaison des 2 mécanismes précédents
 - De toute façon, les mécanismes de recombinaisons eux-mêmes ne sont pas connus
 - Rôles des impuretés secondaires?

Fading pour le $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$

- Le fading du $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ est d'environ 5% pour une période 6 mois à T° ambiante $\rightarrow 2 \times$ plus important que $\text{LiF}:\text{Mg,Tl}$ (tout en restant très bon)
- Si les pics à basse T° sont considérés (80 et 120 $^\circ\text{C}$) \rightarrow fading de 15% sur les 5 premiers jours à T° ambiante et ensuite 5% pour 6 mois



- Attention: très sensible à la lumière \rightarrow 50% de perte de luminescence après 3h d'exposition au soleil (9000 lux)

Sensibilité pour le CaSO_4 : Dy

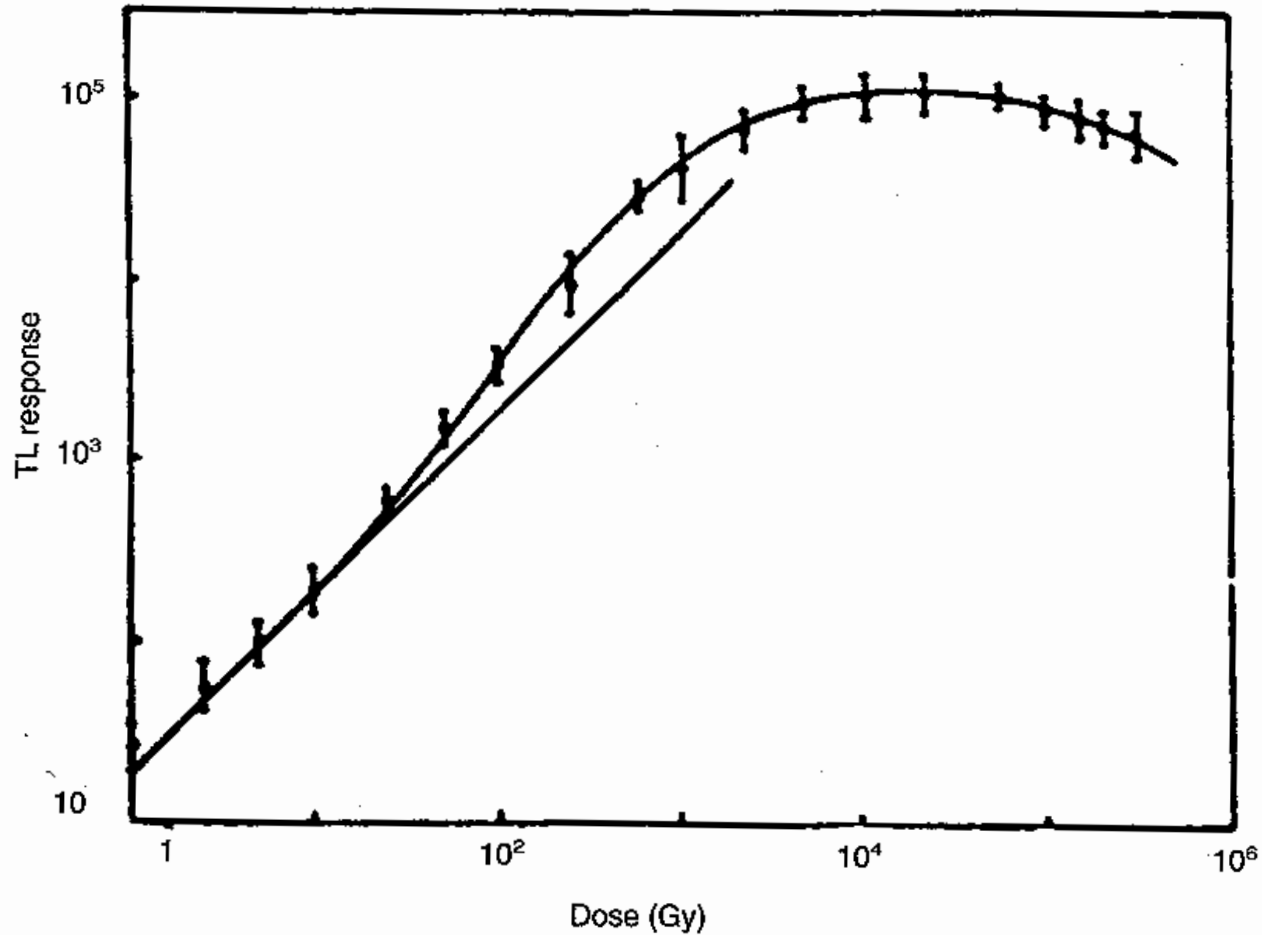
- Sensibilité du CaSO_4 : Dy \rightarrow 30 à 50 \times plus élevée que celle du LiF:Mg,Tl
- Cette propriété associée à celle d'un faible fading \rightarrow particulièrement indiqué pour des mesures de petites doses (applications environnementales)
- Attention: grande variation de sensibilité en fonction du processus de fabrications

Réponse à la dose pour le CaSO_4 : Dy (1)

- $D < 10 \text{ Gy} \rightarrow$ réponse linéaire
- $10 \text{ Gy} < D < 5 \cdot 10^3 \text{ Gy} \rightarrow$ réponse supralinéaire
- $5 \cdot 10^3 \text{ Gy} < D < 10^5 \text{ Gy} \rightarrow$ réponse sublinéaire (saturation)
- $D > 10^5 \text{ Gy} \rightarrow$ diminution de la luminescence (dommages dus à l'irradiation)

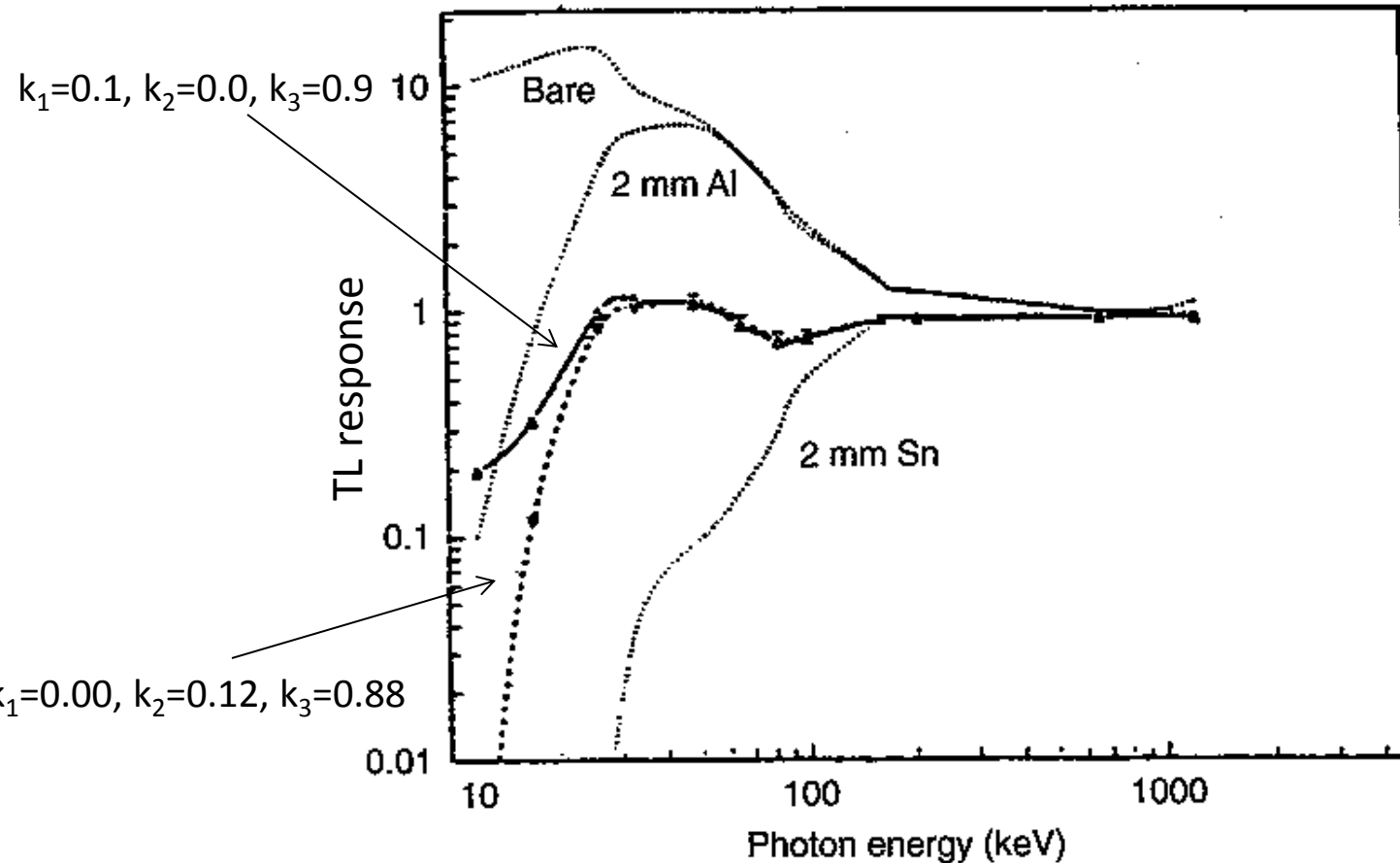
- En ajoutant un dopant secondaire $\rightarrow \text{CaSO}_4$: Dy,Cu \rightarrow linéarité étendue jusqu'à 100 Gy
- Le degré de supralinéarité dépend fortement de la taille des grains de CaSO_4
- Illusoire de démontrer théoriquement ces propriétés

Réponse à la dose pour le $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (2)



Réponse en énergie pour le $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (1)

- $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ est caractérisé par une surestimation significative pour des énergies $<$ à 200 keV



Réponse en énergie pour le CaSO_4 : Dy (2)

- $Z_{\text{eff}}(\text{CaSO}_4) = 15.3 \rightarrow$ **pas du tout tissu-équivalent** \rightarrow inconvénient majeur du CaSO_4 : Dy
- Solution \rightarrow placer des filtres (Al et Sn dans l'exemple précédent)
 - Le Sn améliore la réponse entre 100 keV et 200 keV mais perte de sensibilité aux $E < 100$ keV
 - L'Al donne un bon résultat pour $E \approx 20$ keV
- Le meilleur résultat est obtenu en considérant une combinaison linéaire R des 3 réponses (sans filtre, Sn, Al) \rightarrow

$$R = k_1 R_{\text{sans}} + k_2 R_{\text{Sn}} + k_3 R_{\text{Al}}$$

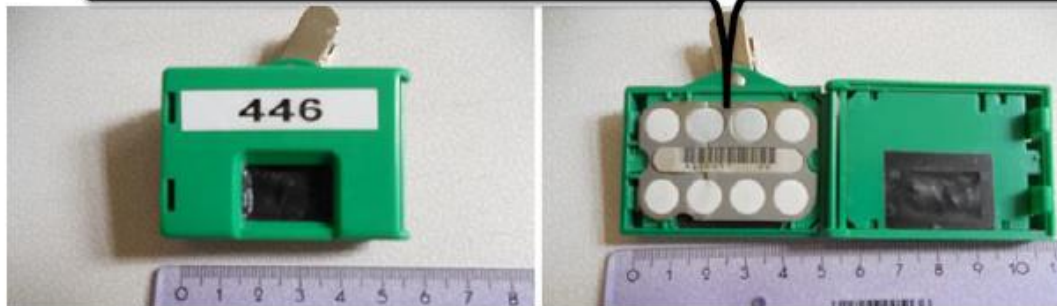
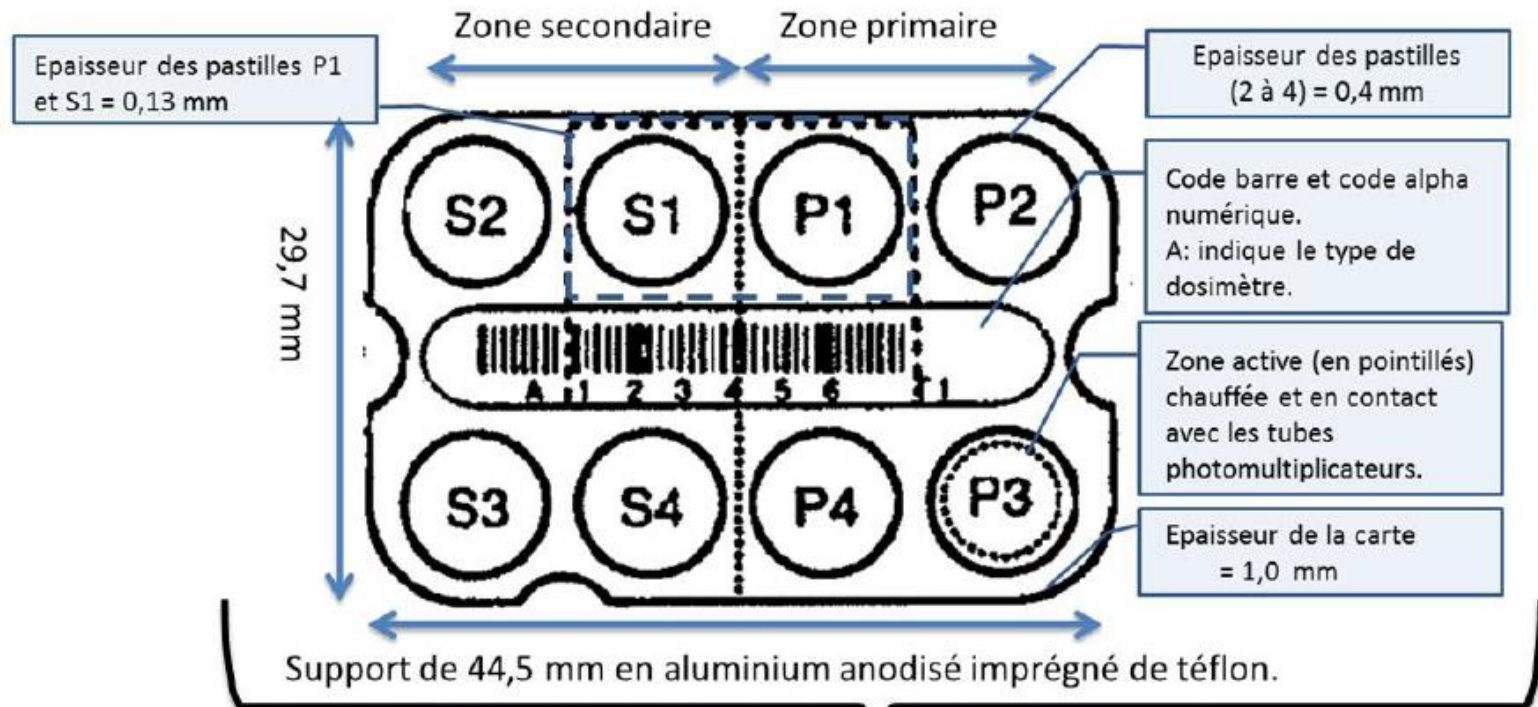
Résumé pour le $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$

- **Pas tissu-équivalent**
- Très dépendant de l'énergie pour $E < 200$ keV (rayonnements γ)
→ nécessité d'utiliser des filtres
- La luminescence principale se situe à ≈ 220 °C pour 2 raies d'émission à 478 nm et 571 nm
- La réponse du $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ en fonction de la dose absorbée est linéaire jusqu'à une dose γ de 10 Gy (100 Gy si Cu ajouté)
- Limite inférieure de dose $\approx 2 \mu\text{Gy}$
- Bonne stabilité à long terme de l'information
- Réutilisation optimale

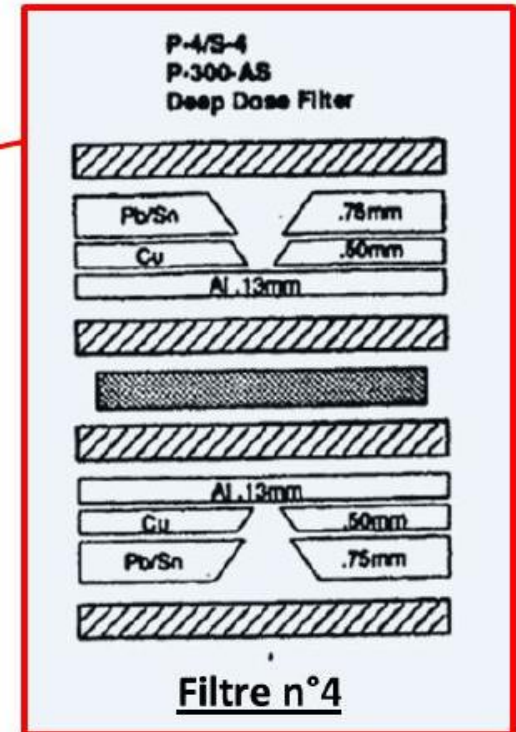
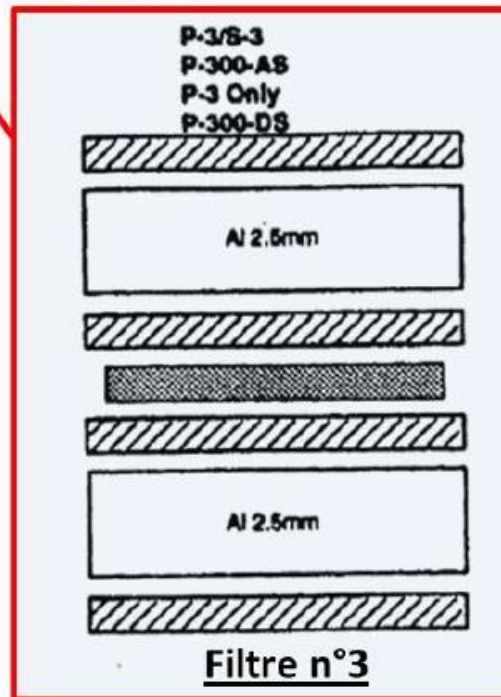
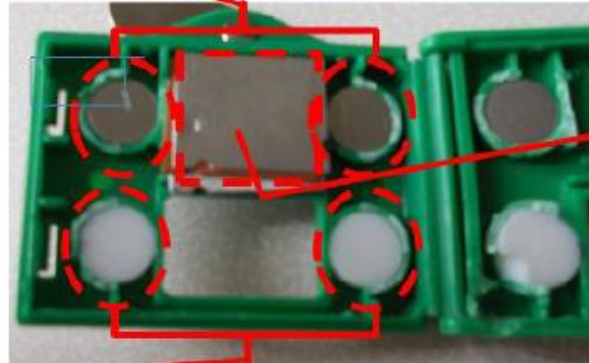
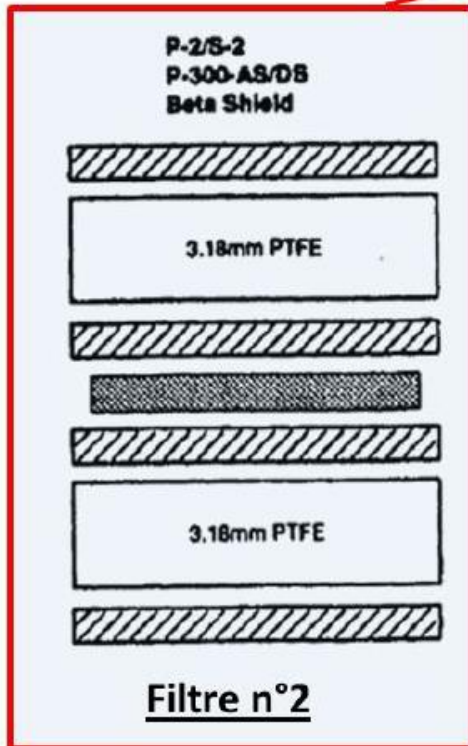
Dosimètre CaSO_4 : Dy en pratique (ULB) (1)

- Les dosimètres sont sous forme de CaSO_4 :Dy/PTFE
- Le PTFE (càd polytétrafluoroéthylène ou téflon) est ajouté au CaSO_4 afin de rendre les pastilles plus souples et moins cassantes
- Les dosimètres sont symétriques et constitués de 8 plages de lecture (4 plages « utiles » et 4 plages de back-up)
- Le boîtier en polyéthylène est composé de 4 zones → ces 4 zones correspondent à 4 filtres → chaque zone est en vis-à-vis d'un des 8 détecteurs
 - Filtre en polyéthylène (7 mg/cm²)
 - Filtre en Al (2.5 mm)
 - Filtre en PTFE (3.18 mm)
 - Filtre Al (0.13 mm) – Cu (0.50 mm) – Pb/Sn (0.75 mm) avec trous

Dosimètre CaSO_4 : Dy en pratique (ULB) (2)



Dosimètre CaSO_4 : Dy en pratique (ULB) (3)



Dosimètre CaSO_4 : Dy en pratique: Interprétation des résultats

- Zone sous polyéthylène → cette fenêtre permet la détection de γ de faible E et de rayonnements β → La réponse en E de cette zone va jusqu'à une surestimation d'un facteur 20 aux basses E (RX) → surestimation compensée par les autres zones à travers un algorithme de calcul
- Zone sous téflon → permet de déterminer l'énergie approximative à laquelle le dosimètre a été exposé et de corriger la mesure de la zone précédente via un algorithme
- Zone sous Al → arrêt des β avec $E < 2.2$ MeV → mesure γ
- Zone sous filtre mixte → permet de mesurer la dose γ en profondeur (les trous permettent le passage d'une portion des γ)