

**BỘ GIÁO DỤC
VÀ ĐÀO TẠO**

**VIỆN HÀN LÂM KHOA HỌC
VÀ CÔNG NGHỆ VIỆT NAM**

HỌC VIỆN KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ



Đinh Thị Quỳnh Giang

**NGHIÊN CỨU KHẢO SÁT CÁC ĐẶC TRƯNG ĐỊNH LIỀU
BỨC XẠ NƠTRON ĐỐI VỚI VẬT LIỆU NHIỆT PHÁT QUANG
 $K_2GdF_5:Tb$**

LUẬN VĂN THẠC SĨ VẬT LÝ NGUYÊN TỬ VÀ HẠT NHÂN

Hà Nội - 2023

**BỘ GIÁO DỤC
VÀ ĐÀO TẠO**

**VIỆN HÀN LÂM KHOA HỌC
VÀ CÔNG NGHỆ VIỆT NAM**

HỌC VIỆN KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ



Đinh Thị Quỳnh Giang

**NGHIÊN CỨU KHẢO SÁT CÁC ĐẶC TRƯNG ĐỊNH LIỀU BỨC
XẠ NƠTRON ĐỐI VỚI VẬT LIỆU NHIỆT PHÁT QUANG
 $K_2GdF_5:Tb$**

LUẬN VĂN THẠC SĨ VẬT LÝ NGUYÊN TỬ VÀ HẠT NHÂN

Mã số: 8 44 01 06

**NGƯỜI HƯỚNG DẪN KHOA HỌC:
PGS.TS. Nguyễn Văn Hùng**

Hà Nội - 2023

LỜI CAM ĐOAN

Tôi xin cam đoan luận văn này là công trình nghiên cứu của tôi dưới sự hướng dẫn của PGS.TS. Nguyễn Văn Hùng. Các số liệu và kết quả trong luận văn được tiến hành tại Trung tâm An toàn bức xạ, Viện Nghiên cứu hạt nhân (Đà Lạt). Thời gian thực hiện thực nghiệm từ tháng 05/2023 đến tháng 10/2023. Vì thế, kết quả này hoàn toàn trung thực và chưa từng được công bố trong bất kỳ công trình nào khác. Những kênh thông tin tham khảo trích dẫn trong luận văn đều được chú thích đầy đủ. Tôi hoàn toàn chịu trách nhiệm về sự cam đoan này.

Hà Nội, ngày 30 tháng 10 năm 2023

Đinh Thị Quỳnh Giang

LỜI CẢM ƠN

Hoàn thành luận văn này, tôi xin gửi lời cảm ơn đặc biệt tới PGS.TS. Nguyễn Văn Hùng – Công tác tại Trung tâm Đào tạo, Viện Nghiên cứu hạt nhân (Đà Lạt) đã tận tình hướng dẫn, quan tâm, giúp đỡ, tạo điều kiện giúp tôi hoàn thành luận văn này.

Tôi xin gửi lời cảm ơn đến Ban Giám đốc Viện Nghiên cứu hạt nhân, ThS. Phan Văn Toàn - làm việc tại Trung tâm An toàn bức xạ (Viện Nghiên cứu hạt nhân) đã hỗ trợ giúp đỡ tôi trong quá trình thực hiện luận văn.

Tôi xin chân thành cảm ơn quý Thầy/Cô giáo, Khoa Vật lý, Phòng Đào tạo, Học viện Khoa học và Công nghệ, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam đã tận tình giảng dạy và tạo điều kiện để chúng tôi hoàn thành chương trình thạc sỹ.

Tôi xin chân thành cảm ơn quý Thầy/Cô giáo của Viện Nghiên cứu và Ứng dụng Công nghệ Nha Trang đã nhiệt tình và tạo điều kiện thuận lợi để giúp tôi hoàn thành chương trình.

Xin chân thành cảm ơn gia đình, bạn bè cùng đồng nghiệp đã luôn khích lệ, động viên và giúp đỡ tôi trong suốt quá trình học tập và nghiên cứu khoa học.

Tuy nhiên, do thời gian thực hiện đề tài luận văn còn hạn chế nên nội dung và kết quả nghiên cứu khoa học không tránh khỏi những thiếu sót. Kính mong nhận được sự đóng góp ý kiến của Quý thầy cô giáo, bạn bè và đồng nghiệp để đề tài luận văn của tôi được hoàn thiện hơn.

Tôi xin trân trọng cảm ơn!

Hà Nội, ngày 30 tháng 10 năm 2023

Đinh Thị Quỳnh Giang

MỤC LỤC

Trang

| | |
|---|----|
| LỜI CAM ĐOAN | |
| LỜI CẢM ƠN | |
| MỤC LỤC | |
| DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU, CHỮ VIẾT TẮT | |
| DANH MỤC BẢNG | |
| DANH MỤC CÁC HÌNH VẼ, ĐỒ THỊ | |
| MỞ ĐẦU..... | 1 |
| Chương 1. TỔNG QUAN TÀI LIỆU | 6 |
| 1.1. LÝ THUYẾT NHIỆT PHÁT QUANG..... | 6 |
| 1.1.1. Khái niệm hiện tượng nhiệt phát quang | 6 |
| 1.1.2. Các đặc điểm của hiện tượng nhiệt phát quang..... | 6 |
| 1.1.3. Giải thích hiện tượng nhiệt phát quang..... | 7 |
| 1.2. MỘT SỐ ỨNG DỤNG CỦA VẬT LIỆU NHIỆT PHÁT QUANG..... | 11 |
| 1.2.1. Đo liều phóng xạ..... | 11 |
| 1.2.2. Tính tuổi khảo cổ..... | 12 |
| 1.3. MỘT SỐ VẤN ĐỀ LIÊN QUAN ĐẾN NHIỆT PHÁT QUANG..... | 12 |
| 1.3.1. Ảnh hưởng của tốc độ gia nhiệt..... | 12 |
| 1.3.2. Ảnh hưởng của loại bức xạ lên đường cong nhiệt phát quang..... | 14 |
| 1.3.2.1. Hình thành đường cong nhiệt phát quang..... | 14 |
| 1.3.2.2. Phép tính từ đường cong nhiệt phát quang..... | 17 |
| 1.3.3. Yêu cầu đáp ứng liều tuyến tính của vật liệu làm liều kế. | 18 |
| 1.4. MỘT SỐ ĐẠI LƯỢNG VÀ ĐƠN VỊ DÙNG TRONG ĐỊNH LIỀU..... | 19 |
| 1.4.1. Liều hấp thụ D..... | 19 |
| 1.4.2. Liều tương đương..... | 19 |
| 1.4.3. Liều hiệu dụng..... | 20 |
| 1.4.4. Tương đương liều cá nhân..... | 20 |
| 1.5. MỘT SỐ ĐẶC TRƯNG ĐỊNH LIỀU CỦA VẬT LIỆU CẦN KHẢO SÁT..... | 21 |

| | |
|--|----|
| 1.5.1. Độ lặp lại về liều..... | 21 |
| 1.5.2. Ngưỡng liều cực tiểu..... | 21 |
| 1.5.3. Dải đáp ứng liều tuyến tính..... | 21 |
| 1.5.4. Sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron..... | 22 |
| 1.5.5. Độ tự chiếu xạ theo thời gian khi lưu trữ vật liệu..... | 22 |
| 1.5.6. Sự suy giảm tín hiệu TL theo thời gian (fading)..... | 23 |
| 1.5.7. Tiêu chuẩn đánh giá các đặc trưng của liều kế..... | 24 |
| 1.6. TÓM TẮT CHƯƠNG 1..... | 24 |
| Chương 2. PHƯƠNG PHÁP THỰC NGHIỆM..... | 25 |
| 2.1. NGUYÊN VẬT LIỆU VÀ TRANG THIẾT BỊ | 25 |
| 2.1.1. Nguyên vật liệu..... | 25 |
| 2.1.2. Trang thiết bị thí nghiệm..... | 25 |
| 2.1.2.1. Hệ chiếu chuẩn neutron Am-Be..... | 25 |
| 2.1.2.2. Lò nung mẫu vật liệu..... | 26 |
| 2.1.2.3. Cân điện tử..... | 27 |
| 2.1.2.4. Máy đo phổ nhiệt phát quang..... | 27 |
| 2.2. BỐ TRÍ THÍ NGHIỆM..... | 29 |
| 2.2.1. Chuẩn bị mẫu | 29 |
| 2.2.2. Bố trí thí nghiệm..... | 31 |
| 2.2.3. Qui trình đo mẫu vật liệu nhiệt phát quang..... | 33 |
| 2.3. PHƯƠNG PHÁP KHẢO SÁT MỘT SỐ ĐẶC TRƯNG CHÍNH CỦA VẬT LIỆU $K_2GdF_5:Tb$ | 39 |
| 2.3.1. Khảo sát độ lặp lại của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ | 39 |
| 2.3.2. Xác định ngưỡng liều cực tiểu..... | 40 |
| 2.3.3. Khảo sát độ tuyến tính của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ | 40 |
| 2.3.4. Khảo sát sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron..... | 41 |
| 2.3.5. Khảo sát độ tự chiếu xạ theo thời gian khi lưu trữ vật liệu..... | 41 |
| 2.3.6. Khảo sát sự suy giảm tín hiệu của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$... | 42 |
| 2.4. TÓM TẮT CHƯƠNG 2..... | 43 |
| Chương 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN..... | 44 |
| 3.1. Độ lặp lại về liều bức xạ | 44 |
| 3.2. Ngưỡng liều cực tiểu..... | 45 |

| | |
|--|----|
| 3.3. Dải đáp ứng liều tuyến tính..... | 46 |
| 3.4. Sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron..... | 48 |
| 3.5. Độ tự chiếu xạ theo thời gian khi lưu trữ vật liệu | 49 |
| 3.6. Sự suy giảm tín hiệu nhiệt phát quang theo thời gian..... | 50 |
| 3.7. TÓM TẮT CHƯƠNG 3..... | 52 |
| KẾT LUẬN VÀ KIẾN NGHỊ..... | 53 |
| TÀI LIỆU THAM KHẢO..... | 55 |
| DANH MỤC CÔNG TRÌNH CỦA TÁC GIẢ..... | 58 |
| PHỤ LỤC 1..... | |
| PHỤ LỤC 2..... | |
| PHỤ LỤC 3..... | |

DANH MỤC CÁC KÝ HIỆU, CHỮ VIẾT TẮT

| Ký hiệu | Tiếng Anh | Tiếng Việt |
|----------------|--|--|
| ATBX | Radiation protection/safety | An toàn bức xạ |
| BG | Background sample | Mẫu đo phông |
| CV | Coefficient of variation | Hệ số biến thiên (thăng giáng) |
| Gy | Gray | Đơn vị liều hấp thụ (1 Gy = 1 J/kg) |
| IAEA | International Atomic Energy Agency | Cơ quan Năng lượng nguyên tử quốc tế |
| ICRP | International Commission on Radiological Protection | Ủy ban An toàn bức xạ quốc tế |
| IEC | International Electrotechnical Commission | Ủy ban Kỹ thuật điện quốc tế |
| KH&CN | Science and Technology | Khoa học và công nghệ |
| LOD | Limit of detection/ Detection threshold | Giới hạn xác định/Ngưỡng xác định |
| MC | Irradiation/survey sample | Mẫu chiếu/mẫu khảo sát |
| NCHN | Nuclear Research | Nghiên cứu hạt nhân |
| PMMA | Poly methyl methacrylate (C ₅ O ₂ H ₈) | Thủy tinh hữu cơ (khối lượng riêng: 1,18 g/cm ³) |
| Rad | Radiation absorbed dose | Đơn vị của liều hấp thụ (1 Rad = 0,01 J/kg = 0,01 Gy) |
| RC | Recombination Center | Mức R (bẫy lỗ trống) |
| RE | Rare earth | Đất hiếm |
| SD | Standard deviation | Độ lệch chuẩn |
| Sv | Equivalent dose (in Sivert) | Đơn vị liều tương đương (1 Sv = 1 J/kg) |

| | | |
|----------|--|--|
| TL | Thermoluminescence | Nhiệt phát quang |
| TLD | Thermoluminescence Dosimeter | Liều kế nhiệt phát quang |
| TSDL | Tertiary Standard Dosimetry Laboratory | Phòng thí nghiệm chuẩn liều bức xạ cấp 3 (cấp cơ sở) |
| UV | Ultraviolet | Tia tử ngoại |
| X | X-ray | Tia-X |
| α | Alpha radiation | Bức xạ alpha |
| β | Beta radiation | Bức xạ beta |
| γ | Gamma radiation | Bức xạ gamma |

DANH MỤC CÁC BẢNG

| Tên bảng | Trang |
|---|-------|
| Bảng 1.1. Sự phụ thuộc của τ vào E và t | 11 |
| Bảng 2.1. Thông số kỹ thuật cơ bản của hệ đọc liều Rexion UL–320 | 28 |
| Bảng 2.2. Chu trình nhiệt độ được cài đặt để ủ nhiệt vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ | 29 |
| Bảng 3.1. Tổng hợp số liệu đo trung bình của 10 lần đo khảo sát độ lặp lại | 44 |
| Bảng 3.2. Kết quả đo ngưỡng liều cực tiểu | 45 |
| Bảng 3.3. Số liệu đo mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đối với 4 mức liều chiếu mẫu khác nhau của bức xạ neutron nhiệt | 46 |
| Bảng 3.4. Kết quả đáp ứng tuyến tính liều của mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đối với bức xạ neutron | 47 |
| Bảng 3.5. Số liệu đo đặc của các mẫu vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ chiếu bức xạ neutron nhanh và neutron nhiệt | 48 |
| Bảng 3.6. Kết quả tỉ số số đếm của bức xạ neutron nhanh và neutron nhiệt của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ | 49 |
| Bảng 3.7. Kết quả của việc khảo sát độ tự chiếu xạ theo thời gian | 49 |
| Bảng 3.8. Kết quả khảo sát độ suy giảm tín hiệu theo thời gian của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đối với bức xạ neutron | 50 |

DANH MỤC CÁC HÌNH VẼ, ĐỒ THỊ

| Tên hình, đồ thị | Trang |
|---|-------|
| Hình 1.1. Cấu trúc vùng năng lượng và các quá trình dịch chuyển | 8 |
| Hình 1.2. Cấu trúc vùng năng lượng thực tế gồm nhiều bẫy điện tử và lỗ trống. | 9 |
| Hình 1.3. Mô hình TL đơn giản gồm 2 mức đối với điện tử và lỗ trống. | 10 |
| Hình 1.4. Sự phụ thuộc của đường cong TL theo tốc độ gia nhiệt β | 13 |
| Hình 1.5. Sự thay đổi nhiệt độ T_m của đỉnh TL khi thay đổi tốc độ gia nhiệt | 14 |
| Hình 1.6. Giải thích sự hình thành đường cong nhiệt phát quang | 15 |
| Hình 1.7. Một số mẫu đường cong nhiệt phát quang tiêu biểu: (a) LiF:Mg,Ti; (b) LiF:Mg,Cu,P; (c) CaF ₂ :Mn; (d) CaF ₂ :Dy; (e) Al ₂ O ₃ :C; (f) CaSO ₄ :Dy | 17 |
| Hình 2.1. Hệ chiếu chuẩn neutron dùng nguồn Am-Be | 25 |
| Hình 2.2. Hệ thống lò nung có cung cấp khí trơ | 27 |
| Hình 2.3. Cân điện tử 4 số BP121S Sartorius | 27 |
| Hình 2.4. Hệ đọc liều Rexion UL-320 | 28 |
| Hình 2.5. Cốc sứ đựng mẫu đặt trong lò nung để ủ nhiệt vật liệu K ₂ GdF ₅ :Tb | 29 |
| Hình 2.6. Đồ thị biểu diễn chu trình nhiệt độ để ủ nhiệt vật liệu K ₂ GdF ₅ :Tb | 30 |
| Hình 2.7. Mẫu vật liệu được chuẩn bị cho chiếu xạ | 30 |
| Hình 2.8. Bố trí thí nghiệm chiếu mẫu với nguồn neutron Am-Be | 31 |
| Hình 2.9. Sơ đồ bố trí thí nghiệm chiếu xạ mẫu trên các hệ chiếu chuẩn neutron | 32 |
| Hình 2.10. Màn hình đăng nhập của Rexion UL-320 | 33 |
| Hình 2.11. Màn hình điều khiển chính của Rexion UL-320 | 34 |
| Hình 2.12. Màn hình cài thông số chu trình TLD | 35 |
| Hình 2.13. Tạo tập tin Analysis | 37 |
| Hình 2.14. Khay mẫu W384 | 37 |
| Hình 2.15. Màn hình chạy mẫu | 38 |

| | |
|--|----|
| Hình 2.16. Màn hình kết quả đo | 38 |
| Hình 3.1. Đồ thị biểu diễn đáp ứng tuyến tính liều bức xạ của mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đối với bức xạ neutron nhiệt | 47 |
| Hình 3.2. Đồ thị biểu diễn độ suy giảm tín hiệu theo thời gian của vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ đối với bức xạ neutron | 51 |

MỞ ĐẦU

1. Lý do chọn đề tài

Ngày nay, việc ứng dụng kỹ thuật hạt nhân sử dụng các nguồn bức xạ ion hóa [bức xạ alpha (α), beta (β), tia-X, gamma (γ), neutron] trong đời sống kinh tế - xã hội ngày càng phát triển, như ứng dụng trong công nghiệp (đo mức và mật độ vật liệu, phân tích thành phần nguyên tố, chiếu xạ và bảo quản thực phẩm, dầu khí, ...), trong y tế (chẩn đoán và xạ trị bệnh), trong nông nghiệp và sinh học (tăng trưởng của cây trồng, chiếu xạ đột biến giống, ...), trong hải quan (kiểm tra hành lý và hàng hóa), v.v. Ngoài ra, việc ứng dụng năng lượng hạt nhân trong việc sản xuất điện năng (nhà máy điện hạt nhân) phục vụ nhu cầu đời sống xã hội cũng ngày càng phát triển. Việc ứng dụng các nguồn bức xạ có nhiều lợi ích như vậy, nhưng nếu không tuân thủ các quy định về an toàn bức xạ (ATBX) và kiểm soát chặt chẽ chúng thì có thể ảnh hưởng tới sức khỏe con người và môi trường (gọi là tính hai mặt của bức xạ ion hóa), đặc biệt là các nhân viên làm việc trực tiếp với các nguồn bức xạ. Do đó, để bảo đảm ATBX cho các nhân viên làm việc trong môi trường bức xạ thì cần thiết phải theo dõi và kiểm soát liều chiếu cá nhân của họ theo quy định tại Điều 27 của Thông tư số 19/2012/TT-BKHCN của Bộ Khoa học và Công nghệ (KH&CN) “Quy định về kiểm soát và bảo đảm ATBX trong chiếu xạ nghề nghiệp và chiếu xạ công chúng” [1].

Trước những quy định như thế, yêu cầu đặt ra là việc nghiên cứu chế tạo các loại vật liệu định liều bức xạ (là thành phần chính của liều kế - Dosimeter) là hết sức cần thiết. Để định liều bức xạ cá nhân trong lĩnh vực ATBX, phổ biến hiện nay là người ta nghiên cứu chế tạo liều kế cá nhân (Personal dosimeter) - là loại liều kế nhiệt phát quang (Thermoluminescence dosimeter – TLD) dựa trên cơ chế nhiệt phát quang (Thermoluminescence - TL). TLD có các ưu điểm là: Độ nhạy cao hay ngưỡng liều cực tiểu (ngưỡng xác định) nhỏ, sự phụ thuộc nhỏ của hiệu suất phát quang vào suất liều bức xạ, dải liều tuyến tính rộng, sự suy giảm tín hiệu TL theo thời gian (Fading) nhỏ, độ lặp lại tốt, hiệu ứng tự chiếu xạ nhỏ, độ ổn định cao đối với bức xạ, bền về nhiệt và hóa học, sử dụng được nhiều lần, kích thước liều kế nhỏ (vật liệu TL dạng bột, chip, dây/dải, đĩa, viên, ...), giá thành chế tạo liều kế thấp, v.v.

Đến nay, TLD đo photon (tia-X, γ) đã được hoàn thiện và thương mại hóa như $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (TLD-900), $\text{LiF}:\text{Mg}$, Ti (TLD-100), v.v. [2-7], tuy nhiên, chúng chủ yếu nhạy với bức xạ photon. Khi đo liều ở các trường bức xạ hỗn hợp bao gồm photon, β và neutron thì các liều kế loại này không đạt được độ nhạy và độ chính xác cao. Do đó, lĩnh vực nghiên cứu chế tạo TLD đo bức xạ neutron vẫn còn nhiều vấn đề cần quan tâm.

Ngoài việc ứng dụng TLD trong định liều cá nhân đối với bức xạ β và photon (bức xạ photon được sử dụng phổ biến nhất), thì việc nghiên cứu chế tạo TLD để định liều cá nhân và khảo sát trường liều đối với bức xạ neutron cũng được quan tâm (các cơ sở bức xạ và hạt nhân sử dụng các nguồn neutron trong nghiên cứu, đào tạo và ứng dụng trong đời sống kinh tế - xã hội). Do bức xạ neutron đặc biệt gây nguy hiểm khi chiếu xạ ngoài (hơn cả bức xạ photon), nên việc định liều neutron (Neutron dosimetry) cần được quan tâm nhằm bảo đảm ATBX khi tiếp xúc với nguồn neutron (thường nguồn neutron đều kèm theo phát bức xạ γ , nên thường người ta quan tâm đồng thời bức xạ γ và neutron khi chiếu xạ ngoài do chúng có độ đâm xuyên lớn). Để định liều bức xạ neutron, một số loại TLD đã được nghiên cứu chế tạo, như: TLD-600 (LiF được làm giàu với 95,6% ^6Li); TLD-800 ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ được làm giàu với ^6Li), ... nhưng thường được sử dụng trong các nghiên cứu khoa học mà ít được thương mại hóa (do đồng vị ^6Li chỉ chiếm 7,4% trong tự nhiên, nên việc làm giàu đồng vị ^6Li khiến chi phí chế tạo vật liệu LiF và $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ rất cao. Về định liều bức xạ neutron sử dụng TLD, chủ yếu người ta thiết kế chế tạo dùng trong mục đích nghiên cứu (như thêm ^6Li trong liều kế LiF và $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ mà hầu như chưa chế tạo thành sản phẩm thương mại).

Để nghiên cứu các vật liệu TL trong định liều bức xạ neutron thì hiện nay trên thế giới, người ta bắt đầu quan tâm đến các tính chất mới của vật liệu TL có tiết diện bắt neutron (σ) lớn để hướng tới nghiên cứu chế tạo TLD ứng dụng trong định liều bức xạ neutron. Những nghiên cứu bước đầu (từ năm 2009 trở lại đây) cho thấy nguyên tố Gadolinium (Gd) có tiết diện bắt neutron nhiệt khá lớn, nên có thể sử dụng các hợp chất chứa Gd làm liều kế đo neutron. Như đã biết, nguyên tố Gd bên trong tự nhiên gồm các thành phần sau: ^{152}Gd chiếm 0,20%; ^{154}Gd chiếm 2,15%; ^{155}Gd chiếm 14,9%; ^{156}Gd chiếm 20,47%; ^{157}Gd chiếm 15,68%; ^{158}Gd chiếm 24,9% và ^{160}Gd chiếm 21,7%. Trong tổng số các đồng vị Gd trong tự nhiên này thì chỉ có một số đồng vị Gd gây phản ứng bắt

notron là: ^{152}Gd có $\sigma < 180$ barn; ^{155}Gd có $\sigma = 6,1.10^4$ barn; ^{157}Gd có $\sigma = 2,4.10^5$ barn; ^{158}Gd có $\sigma = 3,4$ barn và ^{160}Gd có $\sigma = 0,77$ barn. Do đó chỉ có hai đồng vị Gd có tiết diện bắt notron lớn nhất là ^{155}Gd và ^{157}Gd , còn các thành phần Gd khác (^{152}Gd , ^{158}Gd và ^{160}Gd) thì có tiết diện bắt notron rất nhỏ, nên người ta chỉ quan tâm tới đồng vị ^{155}Gd và ^{157}Gd khi chiếu xạ với nguồn notron [8].

Tình hình nghiên cứu trên thế giới

Mới đây chỉ có một số rất ít nghiên cứu ban đầu về các đặc trưng của vật liệu TL chứa Gd pha tạp (hoạt hóa) với ion đất hiếm Dysprosium (Dy) hay Terbium (Tb) và đưa ra khả năng ứng dụng trong định liều bức xạ β , photon và notron (trước năm 2009, tất cả các tài liệu về định liều TL hoàn toàn không thấy nói về vật liệu TL chứa nguyên tố Gd), chẳng hạn như:

- Edna C. Silva et al. [9] đã nghiên cứu về đáp ứng TL của tinh thể K_2GdF_5 pha tạp với Dy^{3+} đối với bức xạ photon và notron: Tổng hợp tinh thể K_2GdF_5 và $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Dy}^{3+}$ bằng phương pháp thủy nhiệt (Hydrothermal method); chiếu xạ từ nguồn notron nhiệt Am-Be; sử dụng TLD-600 để đo so sánh trong cùng một điều kiện; có đáp ứng TL tốt hơn với bức xạ notron nhiệt của nguồn $^{241}\text{Am-Be}$ (độ nhạy bức xạ notron nhanh cỡ 4,5% so với bức xạ notron nhiệt).

- E.C. Silva et al., [10] đã nghiên cứu sơ khởi về TL của vật liệu $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Dy}^{3+}$ được chiếu với bức xạ photon và notron: Chiếu xạ từ nguồn notron nhiệt và notron nhanh; độ nhạy TL đối với bức xạ notron nhanh nhỏ hơn 18 lần, nhưng với bức xạ notron nhiệt thì cao hơn 5 lần so với TLD-600.

Những nghiên cứu trên cho thấy: Về tính chất TL, các hợp chất Fluoride (F) pha tạp với các ion đất hiếm (Rare earth - RE) có độ nhạy TL khá cao, trong đó có vật liệu K_2GdF_5 . Việc pha tạp các ion đất hiếm (như ^{159}Tb hay ^{162}Dy) có thể nâng cao hiệu suất phát quang, nên hướng nghiên cứu chế tạo vật liệu phát quang K_2GdF_5 pha tạp Tb hay Dy để có thể dùng làm TLD để định liều bức xạ, đặc biệt là bức xạ notron có ý nghĩa thực tiễn. Do đó, việc nghiên cứu chế tạo vật liệu TL với nền Fluoride pha tạp các nguyên tố RE là vật liệu đầy hứa hẹn nhằm phát triển phương pháp định liều bức xạ notron.

Hiện nay, vật liệu $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Tb}$ hay $\text{K}_2\text{GdF}_5:\text{Dy}$ được tổng hợp (từ 3 loại vật liệu KF , GdF_3 , $\text{TbF}_3/\text{DyF}_3$) theo phương pháp thủy nhiệt hay phương pháp phản ứng pha rắn (Solide-state reaction method) với những nồng độ pha tạp ion Tb hay Dy khác nhau. Vật liệu này có nhiều đặc điểm quan trọng, đó là độ hấp

thụ neutron của Gd là cao nhất trong số các nguyên tố tự nhiên (như đã nói ở trên), do đó tương tác của vật liệu K_2GdF_5 với chùm neutron là rất mạnh.

Tình hình nghiên cứu ở Việt Nam

Trước đây, vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ được tổng hợp thành công dưới dạng bột từ ba hợp chất tinh khiết (KF , GdF_3 , TbF_3) bằng phương pháp phản ứng pha rắn (với nồng độ pha tạp 10%Tb) tại Viện Nghiên cứu và Ứng dụng công nghệ Nha Trang (NITRA). Đây là vật liệu được chế tạo lần đầu tiên ở Việt Nam và những nghiên cứu bước đầu cho thấy có thể được ứng dụng để định liều cá nhân và đo trường liều đối với bức xạ α , β , photon và neutron, đặc biệt là bức xạ neutron (do nguyên tố Gd nhạy với bức xạ neutron, đặc biệt là neutron nhiệt). Những nghiên cứu trước đây của nhóm tác giả tại NITRA mới chỉ khảo sát bước đầu về một số đặc trưng định liều, như: Liều chiếu cao - cỡ từ 0,5 Sv đến vài Sv, khảo sát đường cong TL (TL glow curve), đáp ứng liều tuyến tính, fading) [2, 11-15]. Sau đó, quy trình tổng hợp vật liệu này được chuyển giao và triển khai thực hiện ở Viện Nghiên cứu hạt nhân (NCHN) [16].

Đề hướng tới việc nghiên cứu chế tạo TLD dùng vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ trong tương lai, bảo đảm các yêu cầu của liều kế nhằm ứng dụng trong định liều cá nhân đối với bức xạ neutron cho nhân viên bức xạ, xác định trường liều bức xạ neutron trong những lĩnh vực khác nhau [máy gia tốc tuyến tính (LINAC) dùng trong y tế và công nghiệp; nguồn bức xạ neutron ứng dụng trong công nghiệp, nghiên cứu, và đo độ ẩm nền đường; lò phản ứng nghiên cứu và nhà máy điện hạt nhân, ...] thì phải thực hiện các nghiên cứu, khảo sát chi tiết về các đặc trưng định liều bức xạ neutron đối với loại vật liệu này, đặc biệt ở dải liều thấp ở mức an toàn (Radiation protection level). Do vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ nhạy với cả bức xạ photon và neutron, nhưng do điều kiện thời gian có hạn, luận văn chỉ tập trung nghiên cứu về đặc trưng định liều của vật liệu đối với bức xạ neutron. Do đó đề tài “***Nghiên cứu khảo sát các đặc trưng định liều bức xạ neutron đối với vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$*** ” thực hiện nhằm đạt được mục tiêu trên.

2. Mục tiêu của đề tài

Mục đích nghiên cứu của đề tài là khảo sát chi tiết một số đặc trưng chính về định liều bức xạ neutron đối với vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ dạng bột, hướng tới nghiên cứu chế tạo liều kế cá nhân đo neutron sử dụng vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ trong tương lai.

3. Đối tượng và phạm vi nghiên cứu

- Đối tượng nghiên cứu: Vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ dạng bột đã được chế tạo tại Viện NCHN.

- Phạm vi nghiên cứu: Khảo sát chi tiết một số đặc trưng chính về định liều bức xạ neutron, bao gồm: Độ lặp lại về liều, ngưỡng liều cực tiểu, dải đáp ứng liều tuyến tính, sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron, mức tự chiếu xạ theo thời gian khi lưu trữ vật liệu, sự giảm tín hiệu TL theo thời gian (fading).

4. Ý nghĩa khoa học và thực tiễn của đề tài nghiên cứu

- Ý nghĩa khoa học: Các đặc trưng định liều bức xạ neutron đối với vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ mở ra một hướng nghiên cứu về khả năng định liều cá nhân sử dụng vật liệu mới này ở mức an toàn (ở dải liều thấp, từ 0,1 mSv đến 20 mSv) – Đây là hướng nghiên cứu mà thế giới đang quan tâm.

- Ý nghĩa thực tiễn: Trước mắt, có thể áp dụng khảo sát trường liều đối với các nguồn bức xạ neutron. Trong tương lai, có thể nghiên cứu chế tạo TLD dùng vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ ứng dụng trong định liều neutron cá nhân nhằm bảo đảm ATBX cho các nhân viên bức xạ ở các cơ sở bức xạ và hạt nhân.

5. Bố cục của luận văn

Ngoài các phần mở đầu, kết luận, tài liệu tham khảo và phụ lục, luận văn gồm ba phần chính như sau:

Chương 1. Tổng quan tài liệu: Trình bày về lý thuyết nhiệt phát quang; một số ứng dụng của vật liệu nhiệt phát quang; một số vấn đề liên quan đến nhiệt phát quang; khái niệm về đại lượng và đơn vị dùng trong định liều bức xạ; một số đặc trưng chính của vật liệu nhiệt phát quang cần khảo sát.

Chương 2. Phương pháp thực nghiệm: Tìm hiểu về nguyên vật liệu và thiết bị sử dụng; tìm hiểu cách bố trí thí nghiệm; tìm hiểu phương pháp xác định một số đặc trưng kỹ thuật chính của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$

Chương 3. Kết quả và thảo luận: Trình bày kết quả đạt được và thảo luận, so sánh kết quả thực nghiệm với tiêu chuẩn IEC 1066:1991 và nhận xét, đề xuất hướng khắc phục những vấn đề còn tồn tại.

Chương 1. TỔNG QUAN TÀI LIỆU

1.1. LÝ THUYẾT NHIỆT PHÁT QUANG

1.1.1. Khái niệm hiện tượng nhiệt phát quang

Nhiệt phát quang [Thermally stimulated luminescence (TSL) - là phát quang cưỡng bức nhiệt, viết tắt là Thermoluminescence (TL)]: Là hiện tượng một vật liệu cách điện (còn gọi là điện môi) hoặc một chất bán dẫn phát ra ánh sáng khi bị nung nóng nếu trước đó vật liệu đã được chiếu xạ một cách có chủ đích hay tình cờ bởi các bức xạ ion hóa (như: α , β , γ , tia-X hoặc neutron) [17].

Vật liệu TL là vật liệu có khả năng hấp thụ và tích lũy năng lượng ion hóa trong suốt quá trình bị phơi chiếu bởi các bức xạ như tia-X, α , β , γ hoặc neutron. Sau đó năng lượng được giải phóng dưới dạng ánh sáng khi vật liệu bị đốt nóng.

Rất nhiều vật liệu có tính chất TL nhưng để ứng dụng trong đo liều thì vật liệu cần thỏa mãn những yêu cầu khắt khe như độ nhạy cao, độ tuyến tính cao, độ fading thấp (Fading là sự suy giảm tín hiệu TL theo thời gian) ... Trong những năm gần đây, thế giới vẫn đang tập trung nghiên cứu nhiều loại vật liệu khác nhau nhằm tăng cường độ chính xác của việc đo liều bức xạ bằng phương pháp TL.

Đây là một hiện tượng rất phổ biến, trong số vài ngàn khoáng vật tự nhiên đã biết có hơn 60 % khoáng vật có hiệu ứng TL, hiệu ứng này còn được phát hiện đối với nhiều vật liệu khác, kể cả các tổ chức sống và vật liệu tổng hợp nhân tạo.

1.1.2. Các đặc điểm của hiện tượng nhiệt phát quang

Muốn xảy ra hiện tượng TL thì vật liệu phải tồn tại các mức năng lượng nằm trong vùng cấm, các mức này đóng vai trò là những bẫy điện tử và lỗ trống. Khi vật liệu được chiếu xạ bằng các bức xạ ion hóa, điện tử (electron) bị bắt tại bẫy và lỗ trống bị bắt tại tâm phát quang. Trong quá trình nung nóng vật liệu, điện tử sẽ nhận được nhiệt năng và thoát ra khỏi bẫy, tái hợp với lỗ trống tại tâm tái hợp và phát ra photon ánh sáng. Cường độ ánh sáng của các photon phát ra khi đốt nóng vật liệu sẽ tỷ lệ với với liều bức xạ mà vật liệu đó đã hấp thụ.

Vật liệu TL phải là vật liệu cách điện hoặc bán dẫn, đối với kim loại thì không có hiện tượng TL.

Nhiệt lượng mà ta cung cấp cho vật liệu khi nung nóng chỉ là yếu tố kích thích, không phải là nguyên nhân gây ra sự phát quang. Nguyên nhân gây ra sự phát quang là do vật liệu đã hấp thụ năng lượng ion hoá từ trước đó.

Các vật liệu này sau khi đã được kích thích nhiệt để phát quang thì khi nâng nhiệt một lần nữa cũng sẽ không phát quang, do điện tử đã thoát ra khỏi bẫy. Nếu muốn phát quang thì vật liệu cần chiếu xạ lần nữa. Lượng tia bức xạ tích lũy theo thời gian được đo đếm bằng vật liệu TL – là thành phần chính của dụng cụ đo liều, đó là liều kế TL (Thermoluminescence Dosimeter - TLD). Trên thế giới, TL là một phương pháp được ứng dụng rộng rãi từ lâu trong nhiều lĩnh vực khác nhau như đo liều xạ trị, đo liều môi trường, đo liều xác định tuổi khảo cổ, v.v. Tại Việt Nam, trong khoảng mười năm gần đây, Viện Nghiên cứu hạt nhân (Đà Lạt) đã nghiên cứu và chế tạo thành công TLD (dùng vật liệu $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ dạng bột) làm dịch vụ đo liều cá nhân và môi trường cho các cơ sở bức xạ và hạt nhân. Như vậy, hiện tượng TL của các vật liệu này liên quan đến hai quá trình vật lý là quá trình hình thành các khuyết tật trong mạng tinh thể đóng vai trò các bẫy và tâm tái hợp trong vật liệu, và quá trình tích lũy của các điện tích trong bẫy do chiếu xạ và quá trình tái hợp điện tử - lỗ trống do cưỡng bức nhiệt phát quang [18].

1.1.3. Giải thích hiện tượng nhiệt phát quang

Tính chất TL được giải thích bằng lý thuyết vùng năng lượng của vật rắn. Cấu trúc vùng năng lượng của các chất bán dẫn hay các chất cách điện lý tưởng được chia làm 3 vùng như sau:

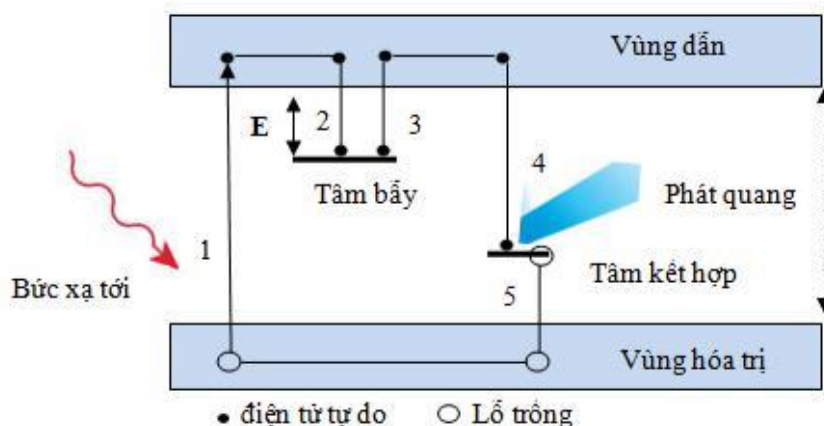
+ Vùng hóa trị: Là vùng có năng lượng thấp nhất theo thang năng lượng, ở vùng này các điện tử liên kết rất chặt chẽ với nguyên tử và không linh động (chúng chỉ chuyển động trên một quỹ đạo xác định ở năng lượng thấp nhất).

+ Vùng dẫn: Là vùng có mức năng lượng cao nhất, vùng này các điện tử chuyển động tự do, vì vậy điện tử ở vùng này là điện tử dẫn.

+ Vùng cấm: Là vùng nằm giữa vùng hóa trị và vùng dẫn không có mức năng lượng nào, điện tử không thể tồn tại trong vùng cấm này.

Tuy nhiên, trên thực tế trong mạng tinh thể luôn luôn tồn tại các loại khuyết tật khác nhau như các vùng khuyết ion hay các tạp chất xen vào nên trong vùng cấm tồn tại một số mức năng lượng cho phép. Các mức năng lượng này đóng vai trò là tâm bẫy điện tử hoặc bẫy lỗ trống (tâm tái hợp). Trên giản

đồ năng lượng trình bày ở Hình 1.1 (đây là mô hình đơn giản nhất) tồn tại một tâm bắt điện tử và một tâm tái hợp (hay tâm phát quang).



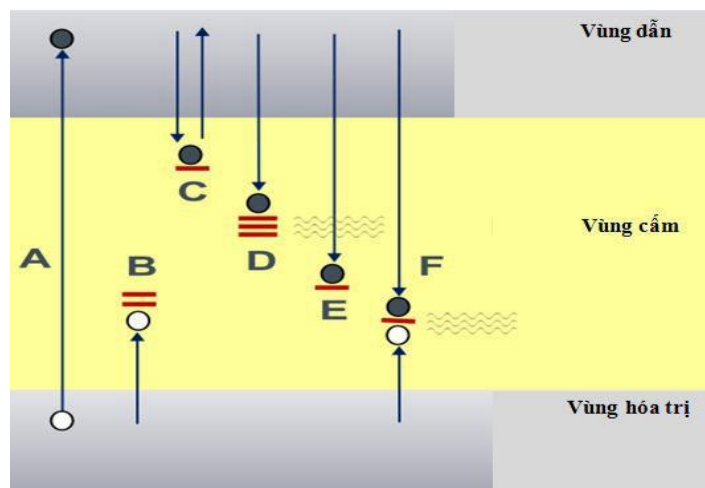
Hình 1.1. Cấu trúc vùng năng lượng và các quá trình dịch chuyển

Từ Hình 1.1, ta thấy sự hình thành và vận chuyển của các hạt tải điện được diễn ra theo các quá trình như sau:

- (1) Quá trình ion hoá.
- (2), (5) Quá trình bẫy electron và lỗ trống.
- (3) Quá trình giải thoát điện tử ra khỏi bẫy bằng nhiệt.
- (4) Quá trình kết hợp giữa electron và lỗ trống với sự phát ra photon ánh sáng.

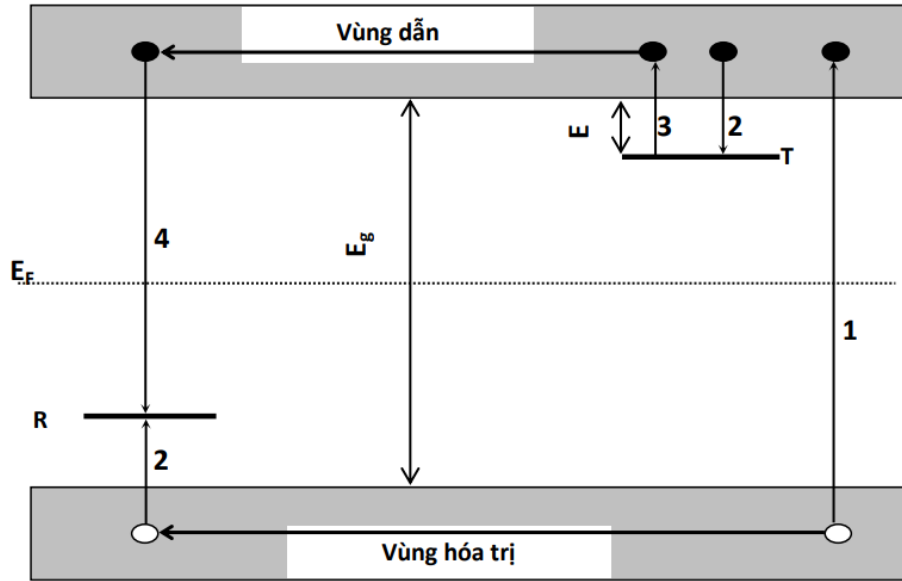
Khi chiếu xạ bởi các tia bức xạ (tia UV, tia-X, γ , neutron...) vào vật liệu thì bức xạ ion hóa được hấp thụ trong vật liệu sẽ tạo ra các hạt tải điện là các điện tử và lỗ trống tự do. Số hạt tải điện sinh ra tỉ lệ với năng lượng mà vật liệu hấp thụ. Đối với sơ đồ vùng năng lượng, các điện tử sau khi nhận được năng lượng của bức xạ ion hóa chuyển từ vùng hóa trị lên vùng dẫn và chuyển động tự do trong vùng này (bước 1). Điện tử và lỗ trống tự do có thời gian sống rất ngắn, chúng lập tức bị bắt vào các tâm bẫy tương ứng (bước 2 và 5). Lúc này mẫu ở trạng thái kích thích, nếu chiếu mẫu với nguồn nhiệt độ thích hợp, điện tử bị bẫy có thể nhận được năng lượng đủ để thoát ra khỏi bẫy. Sau khi thoát ra khỏi bẫy chúng chuyển lên vùng dẫn (bước 3). Thời gian điện tử ở vùng dẫn rất ngắn, chúng có xu thế chuyển về trạng thái cân bằng thông qua việc tái hợp với các lỗ trống trên tâm tái hợp. Quá trình tái hợp của điện tử và lỗ trống xảy ra kèm theo việc giải phóng năng lượng dưới dạng photon ánh sáng nhìn thấy (bước 4). Hiện tượng phát ra ánh sáng do được chiếu bằng nhiệt độ thích hợp được gọi là hiện tượng TL.

Cấu trúc vùng năng lượng thực tế phức tạp hơn nhiều bởi nó không chỉ tồn tại một mức bẫy điện tử và một mức bẫy lỗ trống như Hình 1.1 mà nó có nhiều các mức bẫy khác nhau như trình bày trên Hình 1.2: C là mức bẫy electron gần phía đáy của vùng dẫn, nó là các mức bẫy nông, không bền ngay ở nhiệt độ môi trường do đó điện tử dễ dàng thoát ra khỏi bẫy. D là mức bẫy trung bình và đóng vai trò là các bẫy đo liều chính, điện tử trong mức bẫy này được giải phóng khi được kích thích bằng nhiệt độ phù hợp. E là các mức bẫy sâu, điện tử bị bắt ở đây chỉ có thể thoát ra khi được nung với nhiệt độ cao. B là mức bẫy lỗ trống sâu và F là bẫy lỗ trống đóng vai trò là tâm tái hợp của điện tử và lỗ trống hay chính là tâm phát quang. Ngoài ra các quá trình chuyển động của điện tử và lỗ trống cũng phức tạp hơn nhiều chứ không đơn giản như mô hình một bẫy một tâm.



Hình 1.2. Cấu trúc vùng năng lượng thực tế gồm nhiều bẫy điện tử và lỗ trống.

Trong trường hợp điện tử và lỗ trống tự do tái hợp trực tiếp, năng lượng được giải phóng ra dưới dạng bức xạ sóng điện từ (photon). Cũng có thể xảy ra trường hợp một phần năng lượng được giải phóng ra được dùng để kích thích một tâm huỳnh quang (tâm này có thể trùng với tâm tái hợp). Tâm huỳnh quang hồi phục (trở về trạng thái cơ bản) bằng cách phát xạ ánh sáng. Tuy nhiên, trong các chất bán dẫn hoặc điện môi các hạt tải điện có thể bị bẫy tại các mức năng lượng trong vùng cấm: các điện tử bị bẫy trên bẫy T và các lỗ trống bị bẫy trên tâm tái hợp R chuyển dời (2) trong Hình 1.3.



Hình 1.3. Mô hình TL đơn giản gồm 2 mức đối với điện tử và lỗ trống

Tóm lại, khi có sự đảo mật độ từ trạng thái cân bằng nhiệt động sang trạng thái nửa bền và hồi phục cường bức nhiệt về trạng thái cân bằng ban đầu thì nhiệt phát quang xảy ra.

Xác suất p tính trong một đơn vị thời gian để giải phóng một điện tử khỏi bẫy ở nhiệt độ T tuân theo phương trình Arrhenius [17].

$$p = \frac{1}{\tau} = s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (1.1)$$

Với E là độ sâu của bẫy hay năng lượng cần thiết để giải phóng một điện tử từ bẫy lên vùng dẫn (xem Hình 1.1); T là nhiệt độ tuyệt đối, $k = 8,617 \times 10^{-5}$ eV/K là hằng số Boltzmann; số hạng s được gọi là thừa số tần số hoặc tần số thoát, trong mô hình đơn giản, s được xem là một hằng số (không phụ thuộc nhiệt độ) với một giá trị vào bậc tần số dao động mạng, nghĩa là vào khoảng $10^{10} \div 10^{14}$ s⁻¹. Với $s = 10^{10}$ s⁻¹ sự phụ thuộc của thời gian sống của điện tử trên bẫy τ theo E và t thể hiện trên Bảng 1.1.

Bảng 1.1. Sự phụ thuộc của τ vào E và t [17]

| E (eV) | t °C | | | | |
|--------|-------------------------|-------------------------|---------|----------|-------------|
| | -40 | 20 | 100 | 200 | 300 |
| 0,75 | 13 ngày | 9,1 phút | 0,94 s | 9,7 ms | 270 μ s |
| 1,00 | 9200 năm | 125 ngày | 37 phút | 3,1 s | 43 ms |
| 1,25 | $8,6 \cdot 10^{11}$ năm | $8,6 \cdot 10^4$ năm | 61 ngày | 24 phút | 6,8 s |
| 1,50 | $2,2 \cdot 10^{17}$ năm | $4,9 \cdot 10^{10}$ năm | 401 năm | 7,6 ngày | 18 phút |

Nếu độ sâu của bẫy $E \gg kt_0$, với t_0 là nhiệt độ của vật liệu khi chiếu xạ, thì các điện tử bị bẫy sẽ tồn tại trong một thời gian dài trên bẫy, kết quả là sau khi phơi chiếu sẽ vẫn tồn tại một lượng đáng kể các điện tử bị bẫy.

Do mức Fermi (E_F) cân bằng nằm dưới mức T và trên mức R, nên các điện tử và lỗ trống bị bắt ở các mức bẫy này tương ứng với một trạng thái không cân bằng. Quá trình trở về trạng thái cân bằng luôn luôn có thể xảy ra, nhưng tốc độ phục hồi được xác định bởi phương trình (1.1) là chậm. Do đó, trạng thái không cân bằng là giả bền và sẽ tồn tại trong một khoảng thời gian nhất định, bị chi phối bởi các tham số tốc độ E và s.

Quá trình trở về trạng thái cân bằng có thể được tăng tốc bằng cách tăng nhiệt độ của vật liệu lên cao hơn T_0 . Việc này sẽ làm tăng xác suất thoát khỏi bẫy và các điện tử sẽ được giải phóng từ bẫy vào vùng dẫn. Các hạt tải điện di chuyển trong vùng dẫn của tinh thể cho đến khi bị tái hợp ở tâm tái hợp R. Trong mô hình đơn giản, tâm tái hợp này là một tâm huỳnh quang. Sự tái hợp của điện tử và lỗ trống làm cho tâm này phát ra các lượng tử ánh sáng - đó chính là hiện tượng TL. Cường độ TL - ký hiệu là $I(T)$, tính bằng số lượng photon ánh sáng ghi nhận được trên giây (số đếm/s, signal/s hay count/s) ở thời điểm t bất kỳ và tỉ lệ với tốc độ tái hợp của điện tử và lỗ trống tại R [18].

1.2. MỘT SỐ ỨNG DỤNG CỦA VẬT LIỆU NHIỆT PHÁT QUANG

1.2.1. Đo liều bức xạ

Đo liều bức xạ (còn gọi là định liều bức xạ - Radiation dosimetry) - là phép đo, tính toán và đánh giá lượng bức xạ ion hóa đã hấp thụ bởi cơ thể con người (liều cá nhân), hấp thụ trong môi trường hay vật liệu. Việc đo đường

cong TL (TL flow curve) cho phép ta tính được liều bức xạ mà vật liệu đã hấp thụ. Các vật liệu thể hiện tính chất TL thường được ứng dụng để làm vật liệu chính trong đo liều bức xạ (gọi tắt là liều kế TL - TLD). Với ưu điểm nhỏ gọn, độ nhạy cao, ít chịu tác động của môi trường và khả năng lưu giữ thông tin tốt, TLD là lựa chọn hàng đầu cho các ứng dụng trong đo liều y tế, đo liều cá nhân và môi trường. TLD có thể ở rất nhiều dạng khác nhau, phụ thuộc vào đối tượng sử dụng.

1.2.2. Tính tuổi khảo cổ

Xác định tuổi là một trong những nhu cầu cơ bản thường được đặt ra trong khảo cổ và địa chất. Trên thực tế không có một phương pháp nào có khả năng tính tuổi của mọi loại đối tượng. Tuy nhiên, sự tồn tại của môi trường phóng xạ tự nhiên chính lại là một yếu tố rất quan trọng để từ đó các nhà khoa học tìm ra nhiều cơ chế khác nhau có thể sử dụng để tính tuổi khảo cổ, trong đó phương pháp tính tuổi bằng TL đang rất được chú ý.

Nguyên tắc cơ bản của việc ứng dụng TL trong định tuổi là: Mọi vật trên Trái Đất dù muốn dù không đều bị chiếu xạ từ bên ngoài (với một liều lượng đủ nhỏ để có thể tồn tại được) bởi các tia vũ trụ. Ngoài ra, nếu là gạch ngói (được làm từ đất sét) thì vật liệu còn bị chiếu xạ từ bên trong. Trong đất sét bao giờ cũng có những nguyên tố phóng xạ như ^{238}U , ^{232}Th và ^{40}K mặc dù nồng độ của chúng rất nhỏ, cỡ vài phần ppm (phần triệu). Dưới tác dụng của chiếu xạ, các điện tử và lỗ trống bị bắt tại các bẫy và theo thời gian (tuổi của công trình) nồng độ các điện tích bị bẫy được tích lũy dần lên. Bằng cách đo cường độ phát quang của mẫu (gạch, ngói, gốm) ta suy ra liều phóng xạ mà mẫu đã hấp thụ trong suốt tuổi thọ của nó [17].

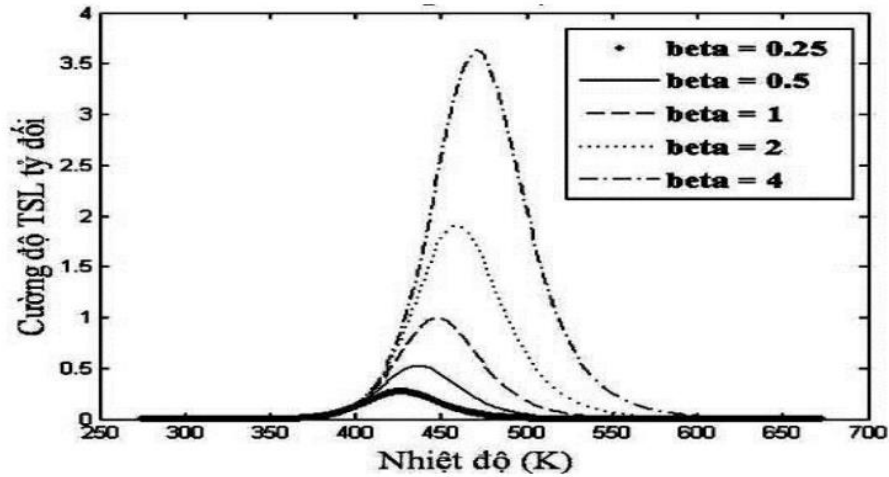
1.3. MỘT SỐ VẤN ĐỀ LIÊN QUAN ĐẾN NHIỆT PHÁT QUANG

1.3.1. Ảnh hưởng của tốc độ gia nhiệt

Các phép đo nghiên cứu TL có khoảng nhiệt độ đo rất rộng từ nhiệt độ phòng đến $600\text{ }^{\circ}\text{C}$. Tuy nhiên trong đo liều, tùy theo loại liều kế, khoảng nhiệt độ đo chỉ thực hiện trong vùng nhiệt độ liên quan đến đỉnh chính (còn gọi là đỉnh đo liều – Dosimetric peak).

Tùy thuộc vào mục đích nghiên cứu, ta có thể chọn tốc độ gia nhiệt [ký hiệu là β - là nhiệt độ trên thời gian ($^{\circ}\text{C}/\text{s}$)] khác nhau. Với mục đích đánh giá các thông số động học, phép đo cần có tốc độ gia nhiệt thấp, khoảng từ $1\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{s}$ đến $2\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{s}$ để cho nhiệt độ của mẫu nghiên cứu và nhiệt độ thực gần bằng nhau.

Nếu mục đích là đo liều, thì tốc độ phải đủ lớn để không xảy ra hiện tượng fading nhiệt (suy giảm tín hiệu do nhiệt độ) trong quá trình đo. Thông thường để xác định liều hấp thụ thì tốc độ gia nhiệt khoảng $10\text{ }^\circ\text{C/s}$ tùy thuộc vào vật liệu. Hình 1.4 cho thấy dạng của các đường cong thay đổi theo tốc độ gia nhiệt. Tốc độ gia nhiệt tăng thì nhiệt độ đỉnh cũng tăng theo, tức là đỉnh dịch về phía nhiệt độ cao, đồng thời cường độ đỉnh cũng tăng lên.



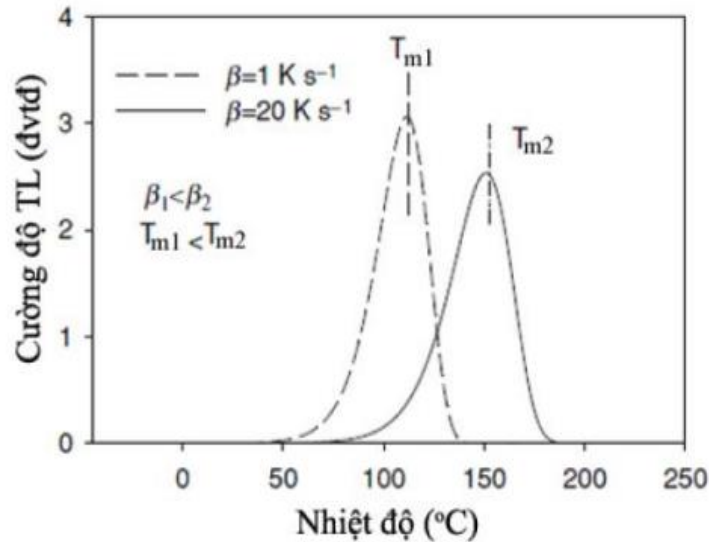
Hình 1.4. Sự phụ thuộc của đường cong TL theo tốc độ gia nhiệt β

Dựa vào kết quả đo thay đổi tốc độ gia nhiệt, độ sâu bẫy có thể tính theo công thức:

$$E = k \frac{T_1 T_2}{T_1 - T_2} \ln \left[\frac{\beta_1 \left(\frac{T_2}{T_1} \right)^2}{\beta_2} \right] \quad (1.2)$$

Trong đó: E được tính theo eV; $k = 8,62 \cdot 10^{-5}$ (eV.K⁻¹) là hằng số Boltzmann; β là tốc độ gia nhiệt; T là nhiệt độ đỉnh tương ứng.

Phương pháp thay đổi tốc độ gia nhiệt: Khi tốc độ gia nhiệt β thay đổi thì nhiệt độ T_m của đỉnh cũng thay đổi. Tốc độ gia nhiệt lớn hơn gây ra sự dịch T_m về phía nhiệt độ cao hơn (xem Hình 1.5).



Hình 1.5. Sự thay đổi nhiệt độ T_m của đỉnh TL khi thay đổi tốc độ gia nhiệt

Phương pháp sử dụng hai tốc độ gia nhiệt đã được Sooner và Franklin tính toán như sau:

$$E = k \frac{T_{m1} T_{m2}}{T_{m1} - T_{m2}} \ln \frac{I_{m1}}{I_{m2}} \quad (1.3)$$

Với: T_{m1} , T_{m2} lần lượt là các giá trị nhiệt độ ứng với giá trị cường độ cực đại đỉnh nhiệt phát quang I_{m1} , I_{m2} ở 2 tốc độ gia nhiệt khác nhau.

1.3.2. Ảnh hưởng của loại bức xạ lên đường cong nhiệt phát quang

1.3.2.1. Hình thành đường cong nhiệt phát quang

Về phương diện thực nghiệm của hiện tượng TL thì phép đo cơ bản nhất là phép đo đường cong phát quang của vật liệu. Đó là đường cong biểu diễn sự thay đổi của cường độ phát quang vật liệu theo nhiệt độ của mẫu (đường TL) [17, 18].

Cường độ phát quang tại một thời điểm bất kỳ t là $I(t)$, tỉ lệ với tốc độ tái hợp của lỗ trống và electron tại tâm tái hợp RC (ở đây ta giả thiết tâm tái hợp là bẫy lỗ trống RC). Nếu gọi n là nồng độ điện tử bị bẫy thì:

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} \quad (1.4)$$

Trong công thức có dấu trừ vì nồng độ điện tử bị bẫy giảm đơn điệu theo thời gian, tức $dn < 0$.

Trong thực nghiệm người ta nâng nhiệt độ mẫu tuyến tính theo thời gian, nghĩa là:

$$T = T_0 + \beta t \quad (1.5)$$

Trong đó: T_0 là nhiệt độ ban đầu của mẫu ($^{\circ}\text{C}$); β là tốc độ gia nhiệt ($^{\circ}\text{C/s}$).

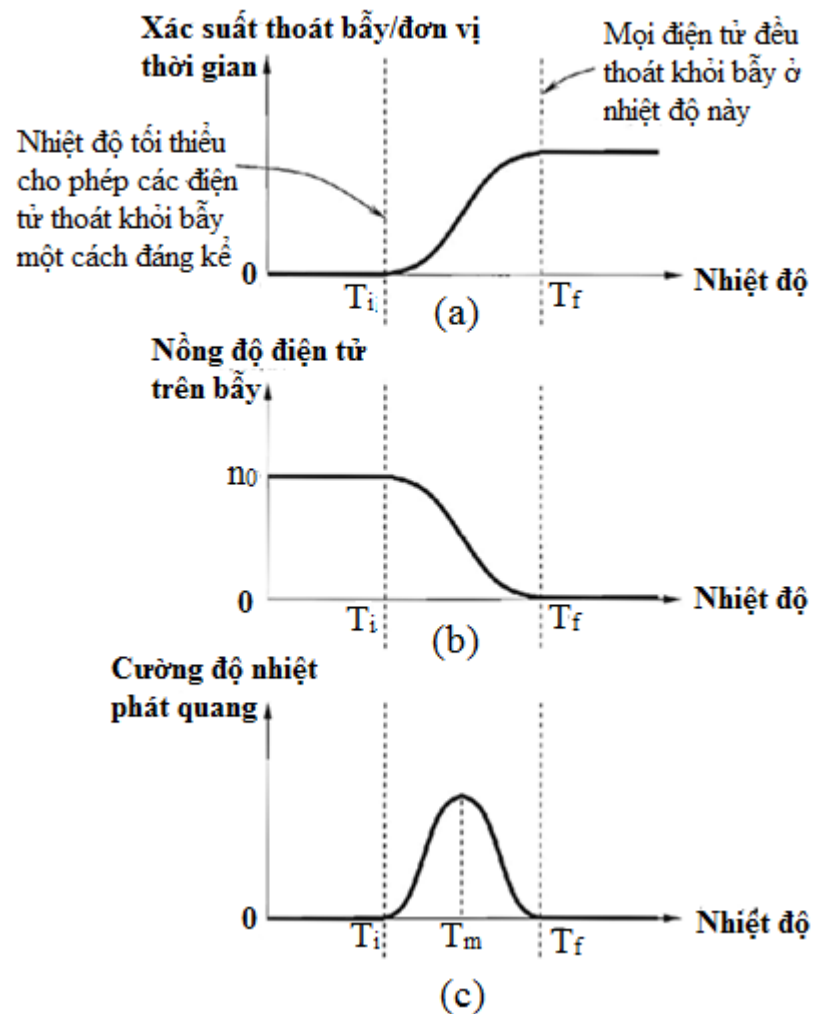
Từ công thức (1.5), ta có:

$$dt = \frac{1}{\beta} dT \quad (1.6)$$

Thế dt vào (1.4), ta thu được:

$$I(T) = -\beta \frac{dn}{dT} \quad (1.7)$$

Từ phương trình trên, giả sử giản đồ mức năng lượng tinh thể chỉ gồm một bẫy, đường cong TL chỉ có một. Đỉnh này được giải thích một cách định tính theo Hình 1.6 [17].



Hình 1.6. Giải thích sự hình thành đường cong nhiệt phát quang

Hình 1.6a biểu diễn sự phụ thuộc của xác suất thoát khỏi bẫy theo nhiệt độ. Từ một nhiệt độ đầu xác định T_i , xác suất thoát khỏi bẫy có nhiệt độ khác không đáng kể và tăng dần theo nhiệt độ. Đến nhiệt độ T_f và lớn hơn thì mọi điện tích bị bắt giữ tại bẫy đều có xác suất thoát bẫy bằng 1, điều đó có nghĩa là mọi bẫy đều trống khi nhiệt tức thời của mẫu lớn hơn T_f .

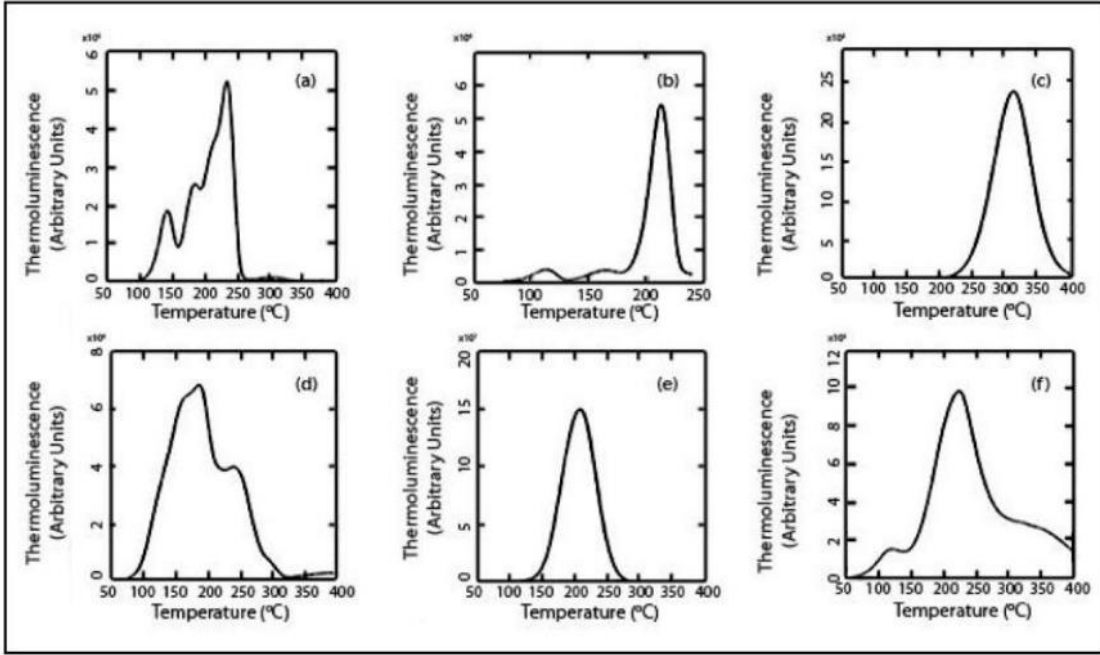
Hình 1.6b trình bày nồng độ điện tử tại bẫy. Khi nhiệt độ tăng số điện tích tại bẫy giảm dần và bằng 0 khi đạt nhiệt độ T_f .

Hình 1.6c biểu diễn sự phụ thuộc của cường độ phát quang theo nhiệt độ. Ta thấy tại nhiệt độ T_m cường độ phát quang đạt cực đại và bắt đầu giảm dần khi số điện tích tại bẫy bắt đầu giảm và bằng 0 tại nhiệt độ T_f .

Từ đường TL cung cấp cho ta các thông tin cần thiết như sau:

- Biên độ cực đại I_m của cường độ phát quang. Giá trị này có quan hệ với nồng độ ban đầu n_0 của điện tích bị bắt tại bẫy.
- Nhiệt độ T_m tại đó cường độ là cực đại. Giá trị này liên quan đến độ sâu năng lượng của bẫy. Năng lượng càng lớn thì T_m càng lớn và ngược lại.
- Hình dạng của đường cong TL.

Trong thực tế, đường cong phát quang có thể có hơn một đỉnh phát quang khi tinh thể có hơn một bẫy và một trong số đỉnh có thể có sự chồng chập lên nhau. Nhưng trong thí nghiệm khi đo cường độ phát quang ta chỉ có thể thu cùng một lúc đồng thời tất cả sự phát quang của mọi đỉnh nên đường cong có dạng là đường tổng hợp của các đỉnh nên có dạng phức tạp. Vì vậy, trong đo liệu bằng bột TL, một trong những điều kiện cần lưu ý là ta phải chọn được vật liệu có đường cong phát quang đơn giản nhất có thể tránh sự chồng chập đỉnh để thu được tín hiệu chính xác. Độ rộng và dạng của đường cong phát quang cũng phụ thuộc vào độ nhạy ánh sáng của thiết bị, các màng lọc giữa mẫu, máy đo và bộ nâng nhiệt. Ví dụ một số dạng đường cong TL của các chất TL khác nhau được trình bày trong Hình 1.7



Hình 1.7. Một số mẫu đường cong TL tiêu biểu: (a) LiF:Mg,Ti ; (b) LiF:Mg,Cu,P ; (c) $\text{CaF}_2\text{:Mn}$; (d) $\text{CaF}_2\text{:Dy}$; (e) $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$; (f) $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$.

1.3.2.2. Phép tính từ đường cong nhiệt phát quang

Trong phép đo liều TL hiện nay, một trong những kết quả ta thu được từ máy đọc đó chính là đường cong TL được biểu diễn trên trục thời gian. Trong thực nghiệm, máy đọc sẽ giữ tốc độ gia nhiệt không đổi trong suốt quá trình đo, khi đó nhiệt độ và thời gian tỉ lệ với nhau, vì vậy cường độ TL cũng có thể biểu diễn là một hàm theo thời gian. Từ đường cong TL này, trong các máy đọc ngày nay thường được tích hợp xử lý tính toán số photon phát xạ từ chất TL, phương pháp tính toán này được dựa theo hàm $\Phi(t)$ biểu diễn tổng số photon phát xạ ghi nhận được và nó cũng chính là diện tích bên dưới của đường cong phát quang [17, 19].

Theo cơ chế TL, máy đọc ghi nhận được là số photon phát ra. Do đó, cường độ phát quang ghi được chính là số photon phát xạ trong một đơn vị thời gian (phù hợp với định nghĩa cường độ phát quang khi giả thiết mọi sự tái hợp đều phát quang). Từ ý trên chỉ ra được mối liên hệ giữa hàm $\Phi(t)$ và cường độ phát quang $I(t)$ như sau :

$$\Phi(t) = \int_0^t I(t) dt \quad (1.8)$$

Với: $\Phi(t)$ là tổng số photon phát xạ; $I(t)$ là cường độ phát quang theo thời gian (photon/s).

Đối với đường cong có nhiều đỉnh phát quang, ta chọn đỉnh đo liều tương ứng với bẫy ổn định thường ở đỉnh có nhiệt độ cao vừa phải để tránh sự ảnh hưởng do nhiệt độ phòng và không quá cao gây nhiễu ngoài từ buồng nung nhiệt, còn các đỉnh ở nhiệt độ thấp kém ổn định người ta thường loại bỏ chúng bằng cách xóa nhiệt. Phương pháp xóa nhiệt được thực hiện trên máy đọc TL, nghĩa là máy chỉ chọn tính phần diện tích của đỉnh đo liều trong khoảng biến thiên nhiệt độ xung quanh nhiệt độ đỉnh phát quang. Biến thiên nhiệt độ cũng chính là biến thiên theo thời gian tương ứng với nhiệt độ đó. Lúc này, tổng số photon phát ra sẽ được lấy tích phân của cường độ phát quang trong khoảng thời gian biến thiên của đỉnh đo liều.

1.3.3. Yêu cầu đáp ứng liều tuyến tính của vật liệu làm liều kế

Các đường cong TL phụ thuộc vào vật liệu nền, nồng độ ion đất hiếm pha tạp và các nguồn chiếu xạ cụ thể như tia β , tia γ hoặc neutron. Các nguyên tố đất hiếm (RE) được đặc trưng bởi lớp điện tử chưa được lấp đầy 4f. Do sự khác nhau về cấu trúc lớp vỏ điện tử của các nguyên tử nên chúng khác nhau về tính chất vật lý, đặc biệt là sự hấp thụ và bức xạ năng lượng. Bên cạnh đó, các nguyên tố đất hiếm có tiết diện bắt neutron và hấp thụ năng lượng bức xạ khá lớn. Với sự thay đổi các loại ion RE trong vật liệu TL, người ta có thể đạt được các độ nhạy khác nhau cho các TLD dùng để đo liều bức xạ. Ngoài ra các nghiên cứu gần đây cho thấy, một số các hợp chất fluoride pha tạp với các ion đất hiếm có tính chất TL rất nhạy. Vì vậy, việc nghiên cứu của các hợp chất fluoride gadolinium pha tạp với ion RE là loại vật liệu đo liều đầy hứa hẹn. Vật liệu có tính chất TL thích hợp sẽ được ứng dụng làm liều kế để đo liều bức xạ, để lựa chọn một vật liệu sử dụng làm liều kế đòi hỏi phải nghiên cứu nhiều tính chất của nó như độ tuyến tính, khoảng đo liều, đáp ứng năng lượng, sự ổn định của thông tin được lưu trữ, tính đẳng hướng, ảnh hưởng của môi trường Ngoài ra, các cơ chế tái hợp điện tử - lỗ trống và khả năng ứng dụng cho đo liều cũng cần được nghiên cứu chi tiết. Đáp ứng của mỗi loại vật liệu TL phụ thuộc một cách khác nhau vào năng lượng của tia chiếu xạ và hầu như các vật liệu đều có đáp ứng phi tuyến tính đối với liều cao. Để vật liệu có thể ứng dụng trong các nghiên cứu đo liều, thì vật liệu TL phải có đường đáp ứng của tín hiệu nhiệt phát quang tỷ lệ tuyến tính với liều chiếu trong khoảng liều chiếu xạ thường sử dụng. Các mẫu được chiếu theo liều khác nhau sau đó thực hiện phép

đo TL trong cùng một điều kiện và các thông số đo phải giống nhau. Từ đó nghiên cứu và so sánh đường cong của các mẫu theo liều chiếu.

1.4. MỘT SỐ ĐẠI LƯỢNG VÀ ĐƠN VỊ DÙNG TRONG ĐỊNH LIỀU

1.4.1. Liều hấp thụ D

Liều hấp thụ D (Absorbed dose) là đại lượng đánh giá mức độ hấp thụ lượng bức xạ, được định nghĩa là phần năng lượng $\overline{d\varepsilon}$ được hấp thụ trong một đơn vị khối lượng vật chất [20].

$$D = \frac{\overline{d\varepsilon}}{dm} \quad (1.9)$$

Trong đó: $\overline{d\varepsilon}$ là năng lượng trung bình mà bức xạ ion hóa truyền cho vật chất trong một thể tích nguyên tố, dm là khối lượng vật chất của thể tích đó.

Đơn vị liều hấp thụ trong hệ SI là Gray (Gy). Một Gy bằng năng lượng 1 J truyền cho 1 kg vật chất. Đơn vị cũ của liều hấp thụ là rad (Radiation absorbed dose) với $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J/kg} = 100 \text{ rad}$.

Suất liều hấp thụ là liều hấp thụ tính trong một đơn vị thời gian, được tính bằng tỉ số:

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} \quad (1.10)$$

Với dD là sự thay đổi của liều hấp thụ trong khoảng thời gian dt (Gy/s hoặc Gy/min) [20].

1.4.2. Liều tương đương

Liều tương đương (Equivalent dose - $H_{T,R}$) - còn gọi là tương đương liều, là đại lượng dùng để đánh giá liều bức xạ trong một tổ chức mô/cơ quan của cơ thể người và được xác định như sau [21]:

$$H_{T,R} = D_{T,R} \times W_R \quad (1.11)$$

Trong đó: $D_{T,R}$ là liều hấp thụ do loại bức xạ R gây ra, lấy trung bình trên cơ quan hoặc tổ chức mô T; W_R là trọng số bức xạ của bức xạ loại R ($W_R = 1$ đối với bức xạ photon, điện tử).

Đơn vị cũ của liều tương đương trong hệ SI là Rem ($1 \text{ Rem} = 0,01 \text{ J/kg}$) và đơn vị mới là Sievert (Sv); $1 \text{ Sv} = 100 \text{ Rem} = 1 \text{ J/kg}$.

Suất liều tương đương (Equivalent dose rate) là liều tương đương trên một đơn vị thời gian.

$$\dot{H} = \frac{dH_{T,R}}{dt} \quad (1.12)$$

1.4.3. Liều hiệu dụng

Liều hiệu dụng (Effective dose - E) là tổng liều tương đương của từng mô nhân với trọng số mô tương ứng tính cho tất cả các mô/cơ quan trong cơ thể, được xác định theo công thức sau [21]:

$$E = \sum_T W_T H_T = \sum_T W_T \left(\sum_R W_R D_{T,R} \right) \quad (1.13)$$

Trong đó: H_T là liều tương đương của mô T, W_T là trọng số mô của mô T. Tổng được lấy cho tất cả các mô/cơ quan trong cơ thể ($\sum W_T = 1$).

Liều hiệu dụng có đơn vị như liều tương đương (J/kg) và được gọi là Sievert (Sv); $1 \text{ Sv} = 1 \text{ J/kg}$.

Suất liều hiệu dụng (Effective dose rate) là liều tương đương trên một đơn vị thời gian (đơn vị đo là J/kg/s hay Sv/s).

$$\dot{E} = \frac{dE}{dt} \quad (1.14)$$

1.4.4. Tương đương liều cá nhân

Tương đương liều cá nhân (Personal dose equivalent) $H_p(d)$ - còn gọi là liều cá nhân tương đương, là tương đương liều trong mô mềm nằm dưới một điểm xác định của cơ thể người tại độ sâu thích hợp d.

Đối với bức xạ đâm xuyên yếu, $d = 0,07 \text{ mm}$ được khuyến cáo để kiểm soát liều da thì tương đương liều cá nhân $H_p(d)$ được viết là $H_p(0,07)$ và $d = 3 \text{ mm}$ để kiểm soát liều thủy tinh thể của mắt thì tương đương liều cá nhân $H_p(d)$ được viết là $H_p(3)$.

Độ sâu $d = 10 \text{ mm}$ được khuyến cáo đối với bức xạ đâm xuyên mạnh (như neutron), tương đương liều cá nhân $H_p(d)$ được viết thành $H_p(10)$. Trong lĩnh vực định liều cá nhân chiếu ngoài, $H_p(10)$ được coi như liều hiệu dụng toàn thân. $H_p(d)$ có thể được đo bằng một liều kế đeo trên bề mặt cơ thể (thường đeo ở phía trước ngực) và được bao phủ bằng vật liệu tương đương mô có độ dày thích hợp [21].

1.5. MỘT SỐ ĐẶC TRƯNG ĐỊNH LIỀU CỦA VẬT LIỆU CẦN KHẢO SÁT

1.5.1. Độ lặp lại về liều

Độ lặp lại (Reproducibility) là một trong những đặc trưng cơ bản của vật liệu TL. Đặc trưng này giúp đánh giá sự ổn định của vật liệu sau nhiều lần đọc và đánh giá mức độ gần nhau của các kết quả thu được của một nhóm có n liều kế với cùng một giá trị liều trong cùng một điều kiện đo liều. Chỉ số độ lặp lại R là đại lượng đánh giá độ lặp lại của TLD và phải thỏa mãn công thức sau [22, 23]:

$$R = \frac{\overline{SD}+1}{\bar{N}} \leq 0,075 \quad (1.15)$$

Trong đó: \overline{SD} là độ lệch chuẩn sau n lần thí nghiệm; \bar{N} là giá trị trung bình sau n lần thí nghiệm; l là khoảng tin cậy của \overline{SD} sau n lần đo.

1.5.2. Ngưỡng liều cực tiểu

Ngưỡng nhạy (Detection threshold/ Limit of detection - LOD) của vật liệu TL hay giá trị liều thấp nhất có thể đo được, là một hàm thống kê biến đổi của những tín hiệu phong thu được từ những mẫu vật liệu không được chiếu (mẫu phong).

Theo tiêu chuẩn IEC 1066:1991, ngưỡng liều cực tiểu phải thỏa mãn điều kiện như sau:

$$\left(t_{\frac{\alpha}{2}} \cdot SD \leq H\right); \quad \text{với } H = 0,1 \text{ mSv} \quad (1.16)$$

Trong đó: $t_{\frac{\alpha}{2}}$ là phân vị mức ý nghĩa $\alpha/2$ và được tra từ bảng phân bố Student với bậc tự do $(n-1)$; SD là độ lệch chuẩn tập hợp phong nội tại của mẫu vật liệu.

1.5.3. Dải đáp ứng liều tuyến tính

Một trong những tiêu chí quan trọng nhất khi chế tạo các vật liệu làm liều kế là sự đáp ứng liều bức xạ của vật liệu và khoảng tuyến tính của nó (Linearity response). Để kiểm tra độ chính xác của mẫu vật liệu ta phải xét mối quan hệ tuyến tính giữa mức liều hấp thụ thực mà vật liệu đã bị chiếu với giá trị liều ta đo được từ vật liệu đó. Ở đây, ta xét chính là mối quan hệ giữa liều tương đương thực chiếu với mức liều đo được từ vật liệu.

Đối với vật liệu TL, việc khảo sát độ tuyến tính của chúng là cần thiết về dải hoạt động tin cậy của vật liệu đó. Độ tuyến tính của TL phải nhỏ hơn hoặc bằng 10%, thỏa mãn công thức sau [22, 23]:

$$0,9 \leq \frac{\bar{N} \pm 1}{C} \leq 1,1 \quad (1.17)$$

Trong đó: \bar{N} là giá trị trung bình của n mẫu vật liệu ở một mức liều (mSv); C là giá trị liều chuẩn (mSv); 1 là độ rộng một nửa khoảng tin cậy của giá trị trung bình \bar{N} trong n_i phép đo.

1.5.4. Sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron

Đối với nguồn bức xạ neutron Am-Be: Có thể tạo bức xạ neutron nhanh (nguồn Am-Be lúc đầu chỉ phát ra neutron nhanh) và neutron nhiệt như sau:

- Khi chiếu xạ mẫu với neutron nhanh thì mẫu được đặt tại vị trí chiếu trong môi trường không khí [nguồn được hệ thống ròng rọc đưa từ Container che chắn (bằng vật liệu Paraffin) lên phía trên theo chiều thẳng đứng, cách sàn phòng thí nghiệm khoảng 1,2 m để chiếu xạ (nguồn ra khỏi Container thì chỉ phát ra neutron nhanh). Khi đó, nguồn tạo ra bức xạ neutron nhanh kèm theo bức xạ gamma tại vị trí chiếu xạ mẫu.

- Trường hợp mẫu chiếu với thuần neutron nhiệt (chỉ có neutron nhiệt, không có các bức xạ khác kèm theo) thì dùng tấm làm chậm PMMA dày hơn 10 cm. Sau đó thêm tấm Bi để chắn (lọc) bức xạ gamma. Khi đó, nguồn tạo ra bức xạ thuần neutron nhiệt (không có bức xạ gamma kèm theo) tại vị trí chiếu mẫu.

Liều phụ thuộc năng lượng hấp thụ trong vật liệu còn tùy thuộc vào cấu trúc vật liệu mà bản chất của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ có số nguyên tử hiệu dụng ($Z_{eff} > 20$) lớn hơn số nguyên tử hiệu dụng của mô cơ thể người ($Z_{eff} \approx 7,4$) nên nhằm đảm bảo độ chính xác trong định liều bức xạ neutron bằng vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ thì cần phải xác định thông số độ phụ thuộc năng lượng của vật liệu. Trong điều kiện thực nghiệm và thời gian có hạn nên luận văn chỉ khảo sát sự phụ thuộc của liều bức xạ đối với neutron nhiệt và neutron nhanh.

1.5.5. Độ tự chiếu xạ theo thời gian khi lưu trữ vật liệu

Khảo sát mức độ tự chiếu xạ (Self-irradiation) của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ nhằm khảo sát hiện tượng vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ bị chiếu xạ bởi các nguyên tố hay các tác nhân phóng xạ có trong hoặc bị lẫn vào các thành phần cấu tạo nên vật liệu (Impurity). Tiêu chuẩn đánh giá mức độ tự chiếu xạ của vật liệu TL dựa trên công thức sau

$$(\bar{N} + 1) - N_{BG} \leq H; \quad \text{với } H = 0,1 \text{ mSv} \quad (1.18)$$

Trong đó, \bar{N} là giá trị trung bình tự chiếu xạ của n mẫu; N_{BG} là phong giám sát tương ứng với khoảng thời gian lưu giữ của mẫu vật liệu; l là một nửa giá trị tin cậy của \bar{N} .

Đối với Hp(10) thì giá trị tự chiếu xạ không vượt quá 0,1 mSv/tháng, giá trị đó tăng lên với cùng một hệ số tăng của thời gian đánh giá mức độ tự chiếu xạ. Ví dụ: khi thời gian đánh giá là 2 tháng thì giá trị tiêu chuẩn tự chiếu xạ sẽ không được vượt quá $0,1 \times 2 = 0,2$ mSv. Có nghĩa là giá trị Hp(10) theo tiêu chuẩn tự chiếu xạ H không được vượt quá 0,2 mSv trong 2 tháng.

1.5.6. Sự suy giảm tín hiệu TL theo thời gian (fading)

Sự suy giảm tín hiệu (Fading) là sự mất tín hiệu không mong muốn hay là sự giải phóng tùy ý những electron (điện tử) ra khỏi bẫy trước khi quá trình đọc được thực hiện. Các quá trình nhiệt hoặc quang kích thích sự giải phóng điện tử chính là nguyên nhân gây ra quá trình suy giảm này. Cụ thể hơn, sự suy giảm tín hiệu là do nhiệt độ. Xác suất điện tử được giải phóng khỏi các tâm bẫy do nhiệt tuân theo phân bố Boltzman như sau [17]:

$$p = \frac{1}{\tau} = s \cdot e^{\left(\frac{-E}{kT}\right)} \quad (1.19)$$

Trong đó: p là xác suất thoát khỏi bẫy của điện tử trong thời gian một giây (s^{-1}); s là hệ số liên quan đến khuyết tật mạng; E là độ sâu của bẫy (eV); k là hằng số Boltzmann ($k = 8,6 \cdot 10^{-5} \text{ eV} \cdot \text{K}^{-1}$); T là nhiệt độ của mẫu tính theo thang nhiệt độ tuyệt đối (K).

Thời gian bán rã của bẫy này là $T_{1/2}$, đây cũng là thời gian bán rã của đỉnh đường cong phát xạ tương ứng, nó được xác định là thời gian để số điện tử bị bẫy giảm đi một nửa giá trị ban đầu [24]:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{p} = \frac{\ln 2}{s \cdot e^{\frac{-E}{kT}}} \quad (1.20)$$

Sự suy giảm do nhiệt diễn ra mạnh đối với các điện tử bị bẫy ở các mức bẫy nông gần đáy của vùng dẫn.

Việc mất tín hiệu theo thời gian là một vấn đề quan trọng trong ứng dụng của liều kế nên cần được xem xét một cách kỹ càng để định rõ đặc trưng của từng loại vật liệu TL. Thông thường, việc nghiên cứu fading được khảo sát trong khoảng từ 15 đến 30 ngày (02 tuần đến 01 tháng) là đủ kết quả cho việc

xác định hệ số fading, tuy nhiên vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ được chế tạo mới hoàn toàn nên thời gian khảo sát cần dài hơn (90 ngày hay 3 tháng).

1.5.7. Tiêu chuẩn đánh giá các đặc trưng của liều kế

Tiêu chuẩn kỹ thuật được áp dụng để đánh giá các đặc trưng của TLD (vật liệu TL cũng ký hiệu là TLD – TL detector) dựa trên các tiêu chuẩn của Ủy ban Kỹ thuật điện quốc tế (IEC) và các khuyến cáo của IAEA, ICRP. Tiêu chuẩn kỹ thuật áp dụng đối với các liều kế cá nhân thụ động TLD là IEC 1066:1991. Đến nay tiêu chuẩn kỹ này cũng đã được chỉnh sửa và tái bản. Tiêu chuẩn IEC 62387:2012 là tiêu chuẩn kỹ thuật cập nhật từ IEC 1066:1991 nhưng mở rộng về dải năng lượng và các tính toán độ không bảo đảm đo (Uncertainty), v.v. Việc đánh giá các đặc trưng của TLD trong luận văn sẽ sử dụng kết hợp hai tiêu chuẩn kỹ thuật này.

1.6. TÓM TẮT CHƯƠNG 1

Chương 1 đã tập trung tìm hiểu về lý thuyết hiện tượng TL của vật liệu bao gồm :

- Định nghĩa, tìm hiểu đặc điểm và giải thích hiện tượng TL.
- Tìm hiểu các ứng dụng của hiện tượng TL.
- Tìm hiểu một số vấn đề liên quan đến TL: các nguồn bức xạ hạt nhân, ảnh hưởng của tốc độ gia nhiệt, ảnh hưởng của loại bức xạ lên đường cong TL (TL flow curve), yêu cầu áp ứng liều tuyến tính của vật liệu làm liều kế.
- Tìm hiểu các đặc tính của đường cong TL của vật liệu K_2GdF_5 pha tạp Tb và các pha tạp khác.
- Tìm hiểu các đại lượng và đơn vị đo liều dùng trong an toàn bức xạ.
- Tìm hiểu một số đặc trưng chính của vật liệu TL.

Chương 2. PHƯƠNG PHÁP THỰC NGHIỆM

2.1. NGUYÊN VẬT LIỆU VÀ TRANG THIẾT BỊ

2.1.1. Nguyên vật liệu

Vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ (pha tạp 10% Tb) được tổng hợp thành dạng bột bằng phương pháp phản ứng pha rắn tại Viện NCHN.

2.1.2. Trang thiết bị thí nghiệm

Trong thí nghiệm này sử dụng các thiết bị tại Viện NCHN, gồm có:

2.1.2.1. Hệ chiếu chuẩn neutron Am-Be

Hệ chiếu chuẩn neutron dùng nguồn đồng vị Am-Be được đặt tại Phòng thí nghiệm chuẩn liều bức xạ cấp 3 (TSDL) (xem Hình 2.1), bao gồm:

- Container (Howitzer) chứa nguồn hình trụ bằng Paraffin có vỏ ngoài bằng nhôm, ở tâm chứa một thỏi nguồn Am-Be (nguồn cũ và không rõ nguồn gốc) với đường kính 5,8 mm và cao 12,6 mm (cường độ phát là $5,6038.10^6 \pm 6\%$ n/s năm 2001, và giảm còn $5,4181.10^6 \pm 6\%$ n/s năm 2022).

- Bàn chiếu bằng sắt thay đổi độ cao và di chuyển được trên ray dẫn hướng trong phạm vi cách nguồn từ 60 - 250 cm.

- Khi chiếu xạ, nguồn Am-Be được đưa lên phía trên bằng hệ thống điều khiển tự động có dây ròng rọc [16].

Thường người ta dùng nguồn Am-Be để chiếu chuẩn trong các phòng thí nghiệm chuẩn liều bức xạ, vì nguồn này có chu kỳ bán rã lớn ($T_{1/2} = 432$ năm) nên liều (hay suất liều) ổn định theo thời gian hơn (suy giảm chậm hơn).



Hình 2.1. Hệ chiếu chuẩn neutron dùng nguồn Am-Be

2.1.2.2. Lò nung mẫu vật liệu

Đặc điểm: N11/H là loại lò nung chuyên dụng để nung và ủ mẫu của Nabertherm – Đức.

- Lò được thiết kế có thể mở rộng rất nhiều loại phụ kiện để xây dựng một ứng dụng hoàn thiện như: Hộp ủ, con lăn dẫn hướng, bể làm mát

- N11/H được trang bị hệ thống gia nhiệt 3 mặt gồm: Mặt trên, và 2 mặt bên qua đó luôn đảm bảo độ đồng nhất nhiệt độ trong lò.

- Lò có vỏ lò được làm bằng thép không gỉ, đồng thời được cách nhiệt tốt với loại sợi Non-Classified.

- Buồng lò sâu với hệ thống sưởi ba mặt: từ cả hai thành bên và đáy lò.

- Các bộ phận làm nóng trên các ống hỗ trợ đảm bảo bức xạ nhiệt tự do và tuổi thọ lâu dài.

- Lò nung có đáy gia nhiệt được bảo vệ bằng tấm SiC chịu nhiệt.

- Nhiệt độ đồng nhất lên đến $\pm 10^{\circ}\text{C}$ theo DIN 17052-1

- Cửa xoay hướng xuống song song có hướng dẫn (người dùng được bảo vệ khỏi bức xạ nhiệt).

- Cửa chuyển động đệm với bộ giảm chấn/thanh chống khí.

- NTLog cơ bản cho bộ điều khiển Nabertherm: ghi dữ liệu quá trình bằng ổ USB flash.

- Bộ điều khiển nhiệt độ C540: 10 Chương trình/20 bước; Lên đến 2 chức năng có thể cài đặt; Tùy chọn hiệu chuẩn (10 điểm cơ bản); Bảng cảm ứng; NTLog (Đồng hồ thời gian thực); Cổng kết nối USB.

Thông số kỹ thuật:

- Nhiệt độ tối đa: 1280°C

- Diện tích buồng: 11 lít

- Nguồn điện: 1 pha

- Công suất: 3,6 kW

- Trọng lượng: 70 kg

- Kích thước trong: $250 \times 350 \times 140 \text{ mm}^3$ (R x S x C)

- Kích thước ngoài: $720 \times 740 \times 510 \text{ mm}^3$ (R x S x C).



Lò nung NaberTherm có cung cấp khí trợ

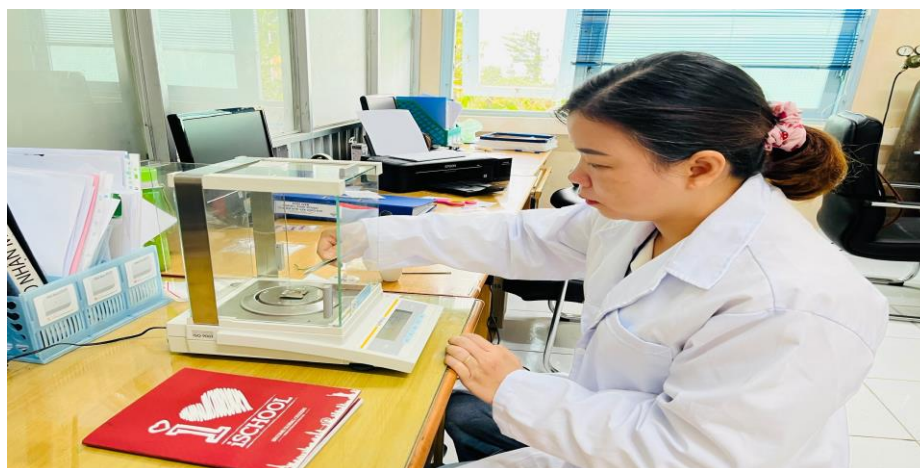


Bản điều khiển nhiệt độ lò nung bằng phần mềm chuyên dụng của hãng sản xuất NaberTherm

Hình 2.2. Hệ thống lò nung có cung cấp khí trợ

2.1.2.3. Cân điện tử

Các nguyên liệu được cân bằng cân phân tích điện tử 4 số BP121S Sartorius (Đức) khả năng cân được tới 120 g và độ đọc được $d = 0,1$ mg.

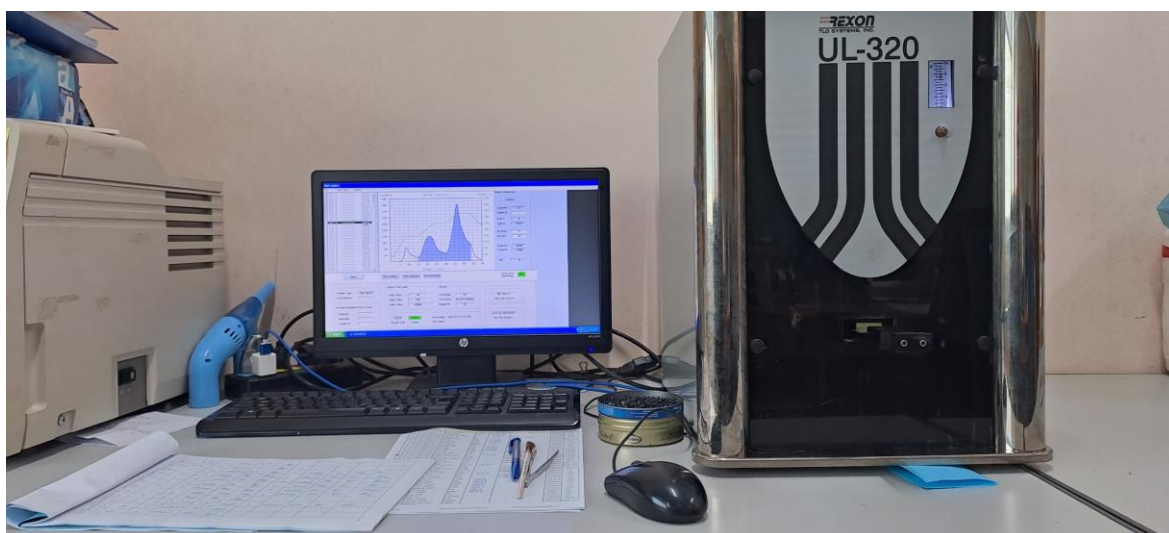


Hình 2.3. Cân điện tử 4 số BP121S Sartorius

2.1.2.4. Máy đo phổ nhiệt phát quang

Hệ thống đọc liều nhiệt phát quang Rexion UL-320 (Hãng Rexion, USA), gọi tắt là hệ đọc liều Rexion UL-320 (xem Hình 2.3) bao gồm: một máy đọc tín hiệu TL và một máy tính chạy hệ điều hành Windows XP có cài đặt phần mềm điều khiển, một màn hình VGA. Hệ đọc liều Rexion UL-320 dùng để xác định liều bức xạ (β , γ , tia-X, neutron) và được ứng dụng trong việc định liều bức xạ cá nhân. Hệ đọc liều UL-320 dùng cho các dạng vật liệu TL như dạng bột, dạng viên nén, dạng que, Phần mềm kèm theo chạy trên Windows XP cung cấp khả năng kiểm soát, cài đặt nhiều thông số khác nhau đối với các chất TL khác nhau và khả năng xử lý, quản lý tập tin lưu trữ. Phần mềm có thể sử dụng độc

lập với hệ đọc liều Rexion UL-320, giúp việc phân tích số liệu đã đo chủ động hơn. Mẫu TLD được đo tự động, nhiệt độ trong quá trình đo được xác định bằng cảm biến hồng ngoại. Khi chu trình TLD hoàn thành, đường cong TL, nhiệt độ, số đếm sẽ được hiển thị và lưu trữ trong các tập tin phân tích [25]. Hệ đọc liều Rexion UL-320 ghi đo số tín hiệu (Signal, còn gọi là số đếm - count) photon ánh sáng từ ống nhân quang điện của hệ đo – nó khác với hệ đọc liều Harshaw là ghi đo số điện tích (đơn vị là nC).



Hình 2.4. Hệ đọc liều Rexion UL-320

Các thông số kỹ thuật cơ bản của hệ đọc liều Rexion UL-320 được trình bày trong Bảng 2.1.

Bảng 2.1. Thông số kỹ thuật cơ bản của hệ đọc liều Rexion UL-320

| Stt | Đặc tính kỹ thuật | Thông số |
|-----|-------------------------------------|--|
| 1 | Nguồn điện, dòng | 230 VAC/50 Hz, 0,7 A |
| 2 | Vật liệu TLD | Chíp, que, đĩa, viên, bột |
| 3 | Thời gian chu trình TLD | 0 – 3 phút. Có thể điều chỉnh trong khoảng 1 s. |
| 4 | Hệ thống nung chất nhiệt phát quang | Nung nóng trực tiếp với TTP 10 nút Độ chia nhiệt độ nhỏ nhất: 1 °C Dải nhiệt độ: đến 500 °C Kiểm soát nhiệt độ: 10 điểm Độ chính xác: 1 °C |

| Stt | Đặc tính kỹ thuật | Thông số |
|-----|--|--|
| 5 | Báo cáo số liệu TLD | Đường cong nhiệt phát quang với độ chia 100 ms |
| 6 | Cao thế | 0 – 2000 VDC |
| 7 | Điều kiện môi trường: Nhiệt độ Độ ẩm | 5 °C đến 40 °C 5 – 95 % không ngưng tụ |
| 8 | Lập trình chu kỳ nhiệt độ | Người dùng kiểm soát, có thể lập trình chu kỳ 10 điểm (10 node). |

2.2. BỐ TRÍ THÍ NGHIỆM

2.2.1. Chuẩn bị mẫu

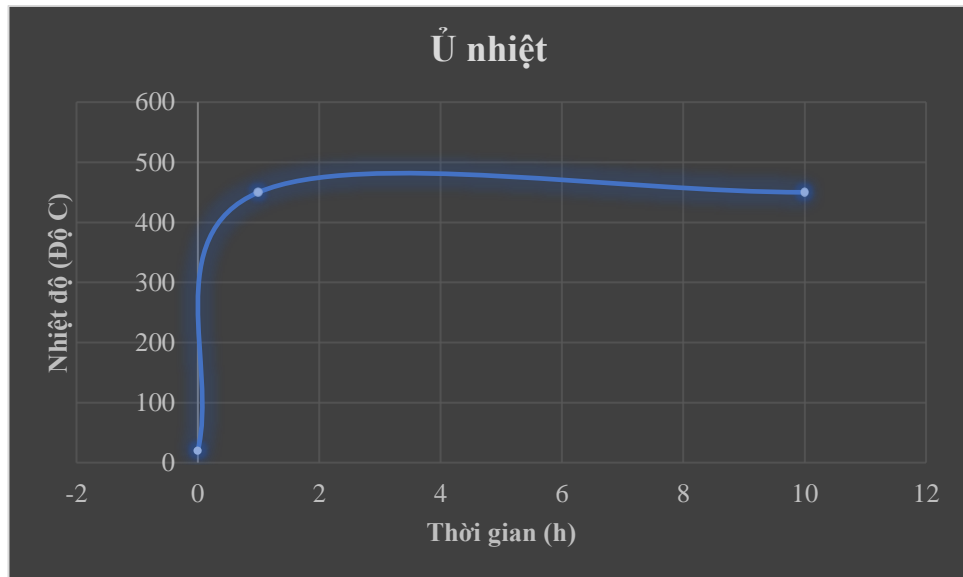
- Mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ được xóa tín hiệu tồn dư sau các lần khảo sát hoặc ảnh hưởng của phong bức xạ tự nhiên bằng cách ủ nhiệt (Annealing) vật liệu TL bằng lò nung ở nhiệt độ 450 °C với thời gian 10 giờ, sau đó cho mẫu nguội một cách tự nhiên đến nhiệt độ phòng và tiến hành nạp vật liệu vào tuýp mẫu.



Hình 2.5. Cốc sứ đựng mẫu đặt trong lò nung để ủ nhiệt vật liệu $K_2GdF_5:Tb$

Bảng 2.2. Chu trình nhiệt độ được cài đặt để ủ nhiệt vật liệu $K_2GdF_5:Tb$

| Phân đoạn nhiệt | 1 | 2 | 3 | 4 |
|-------------------------|----|-----|-----|-----|
| Thời gian (h) | 0 | 1 | 10 | |
| Nhiệt độ (°C) | 20 | 450 | 450 | End |
| Tốc độ gia nhiệt (°C/h) | | 430 | | |



Hình 2.6. Đồ thị biểu diễn chu trình nhiệt độ để ủ nhiệt vật liệu $K_2GdF_5:Tb$

Các mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ dạng bột đã sấy khô được cân khối lượng bằng cân phân tích điện tử 4 số BP121S (độ chính xác $d = 0,1$ mg). Mỗi mẫu sau khi cân có khối lượng khoảng 20 mg (đủ phù hợp với diện tích chứa mẫu bột trong khay đo của máy đọc liều Rexion UL-320), được đưa vào tuýp nhựa đen hình trụ có nắp (chiều cao ngoài 14 mm, đường kính ngoài 5 mm, chiều cao trong 8 mm, đường kính trong 2 mm) và được đánh số theo thứ tự. Sau đó, các tuýp nhựa chứa mẫu vật liệu (gọi tắt là mẫu - Sample) được chứa trong túi nilon để thực hiện chiếu xạ. Mỗi túi nilon (gọi là mẻ mẫu – Sample lot) chứa một số mẫu và chiếu với một loại bức xạ cần khảo sát (xem Hình 2.4). Khi chiếu xạ, các mẫu trong túi nilon được xếp sát nhau thành một mặt dẹt phẳng để bảo đảm khi chiếu xạ thì các mẫu có cùng khoảng cách tính từ nguồn bức xạ, nằm trong trường xạ và được chiếu xạ với cùng một liều.



Hình 2.7. Mẫu vật liệu được chuẩn bị cho chiếu xạ

2.2.2. Bố trí thí nghiệm

- Hệ chiếu chuẩn neutron dùng nguồn Am-Be, đặt tại Phòng thí nghiệm chuẩn liều bức xạ cấp 3 (TSDL), Viện NCHN.

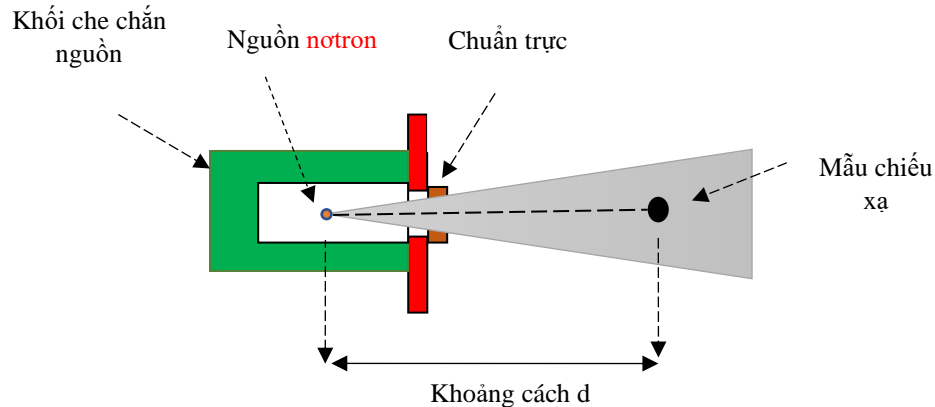
- Khi chiếu mẫu được đặt vuông góc với chùm tia bức xạ theo đường nằm ngang song song với bề mặt sàn phòng thí nghiệm tại một vị trí theo khoảng cách đã tính toán suất liều (trùng với tâm trường chiếu). Vị trí chiếu xạ theo các chiều được điều chỉnh chính xác bằng thiết bị định vị Laze “BOSH GLL 3-15 X” nhằm bảo đảm liều chiếu xạ đúng với liều tính toán (xem Hình 2.5). Liều $[H^*(10)]$ được tính bằng suất liều tương đương môi trường (kết quả đo và tính suất liều đối với nguồn bức xạ neutron nhiệt và nhanh của nguồn Am-Be) tại một vị trí chiếu đã chọn nhân với thời gian chiếu xạ tương ứng. Thời gian chiếu xạ được điều chỉnh và đặt trước trên bàn điều khiển tự động của hệ thống mở/đóng nguồn (nguồn từ Container che chắn được đưa từ dưới lên theo chiều thẳng đứng).



Hình 2.8. *Bố trí thí nghiệm chiếu xạ mẫu với nguồn neutron Am-Be*

- Sơ đồ khối về bố trí thí nghiệm chiếu xạ mẫu trên các hệ chiếu chuẩn neutron Am-Be được trình bày trên Hình 2.8. Do nguồn neutron bao giờ cũng kèm theo phát ra bức xạ gamma, nên khi chiếu xạ với các nguồn này thì mẫu vật liệu sẽ hấp thụ được cả năng lượng neutron và năng lượng gamma, và phổ TL ghi nhận cả tín hiệu do bức xạ neutron và bức xạ gamma. Tỷ số liều tương đương của photon trên neutron đối với nguồn Am-Be là nhỏ hơn 5%. Chẳng hạn đối với nguồn Am-Be, phản ứng giữa ${}^9\text{Be}$ và bức xạ alpha của ${}^{241}\text{Am}$ tạo ra bức

xạ neutron và đồng vị ^{12}C ở trạng thái kích thích và phát ra bức xạ gamma có năng lượng 4,44 MeV).



Hình 2.9. Sơ đồ bố trí thí nghiệm chiếu xạ mẫu trên các hệ chiếu chuẩn neutron

- Khi chiếu xạ mẫu với neutron nhanh thì mẫu được đặt tại vị trí chiếu trong môi trường không khí [nguồn được hệ thống ròng rọc đưa từ Container che chắn (bằng vật liệu Paraffin) lên phía trên theo chiều thẳng đứng, cách sàn phòng thí nghiệm khoảng 1,2 m để chiếu xạ (nguồn ra khỏi Container thì chỉ phát ra neutron nhanh). Khi đó, nguồn tạo ra bức xạ neutron nhanh kèm theo bức xạ gamma tại vị trí chiếu xạ mẫu.

- Trường hợp mẫu chiếu xạ với thuần neutron nhanh (chỉ có neutron nhanh, không có các bức xạ khác kèm theo) thì dùng tấm chắn Bismuth (Bi) đặt trước vị trí mẫu chiếu để chắn (lọc) bức xạ gamma phát ra từ nguồn. Khi đó, nguồn tạo ra bức xạ thuần neutron nhanh (không có bức xạ gamma kèm theo) tại vị trí chiếu mẫu.

- Khi chiếu xạ với neutron nhiệt thì mẫu được đặt tại vị trí chiếu sau tấm làm chậm bằng thủy tinh hữu cơ (PMMA) hình hộp chữ nhật dày 10 cm (kích thước mỗi tấm là $1 \times 30 \times 30 \text{ cm}^3$, tổng cộng 10 tấm có chiều dày 10 cm) hoặc khối làm chậm hình trụ Bonner bằng vật liệu PE dày 10 cm. Khi đó, nguồn tạo ra bức xạ neutron nhiệt có kèm theo bức xạ gamma tại vị trí chiếu xạ mẫu.

- Trường hợp mẫu chiếu với thuần neutron nhiệt (chỉ có neutron nhiệt, không có các bức xạ khác kèm theo) thì dùng tấm làm chậm PMMA dày 10 cm mà không dùng khối làm chậm hình trụ Bonner được (do đường kính trong của khối trụ Bonner là 2,6 cm và không đặt được tấm chắn Bi hình trụ có kích thước lớn) để tạo chùm neutron nhiệt. Sau đó thêm tấm Bi để chắn (lọc) bức xạ gamma.

Khi đó, nguồn tạo ra bức xạ thuần neutron nhiệt (không có bức xạ gamma kèm theo) tại vị trí chiếu mẫu.

Tuy nhiên, theo nghiên cứu về vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ thì thấy rằng vật liệu này chỉ bắt neutron nhiệt tốt và không nhạy với bức xạ neutron nhanh [16]. Do đó, trong khuôn khổ luận văn chỉ nghiên cứu các đặc trưng định liều bức xạ neutron nhiệt đối với vật liệu $K_2GdF_5:Tb$.

2.2.3. Qui trình đo mẫu vật liệu nhiệt phát quang

Các mẫu sau khi cân và bỏ vào tuýp, sau đó mang đi chiếu xạ với liều lượng thích hợp rồi mang đi đo trên máy đọc liều Rexion UL-320.

Để nâng cao độ chính xác cũng như độ ổn định của hệ thống, cần bảo quản máy tránh độ ẩm cao và bật máy ít nhất 30 phút trước khi đo.

1. Đầu tiên để thực hiện một chu trình đo TLD ta phải đăng nhập vào hệ thống (xem Hình 2.10). Dùng tên đăng nhập mặc định “A1” và mật khẩu mặc định “1A” để đăng nhập.



Hình 2.10. Màn hình đăng nhập của Rexion UL-320

2. Sau các bước đăng nhập, màn hình điều khiển chính sẽ xuất hiện. Phía bên phải màn hình hiển thị trạng thái hiện tại của hệ thống (các trường System, N2, Drawer, Process File Name, Analysis File Name) (xem Hình 2.11).

System:

320-ONLINE: Máy đọc liều đang kết nối thành công với máy tính qua cổng RS232.

BIT-OK.

STATUS-OK.

N₂:

REQD (Nitrogen Required): Luôn chọn “NO”

VALVE: CLOSE

FLOW: OFF

Drawer:

Gồm 2 nút công cụ ”CLOSE” và “OPEN” dùng để “đóng” và “mở” giá đặt khay chứa mẫu.

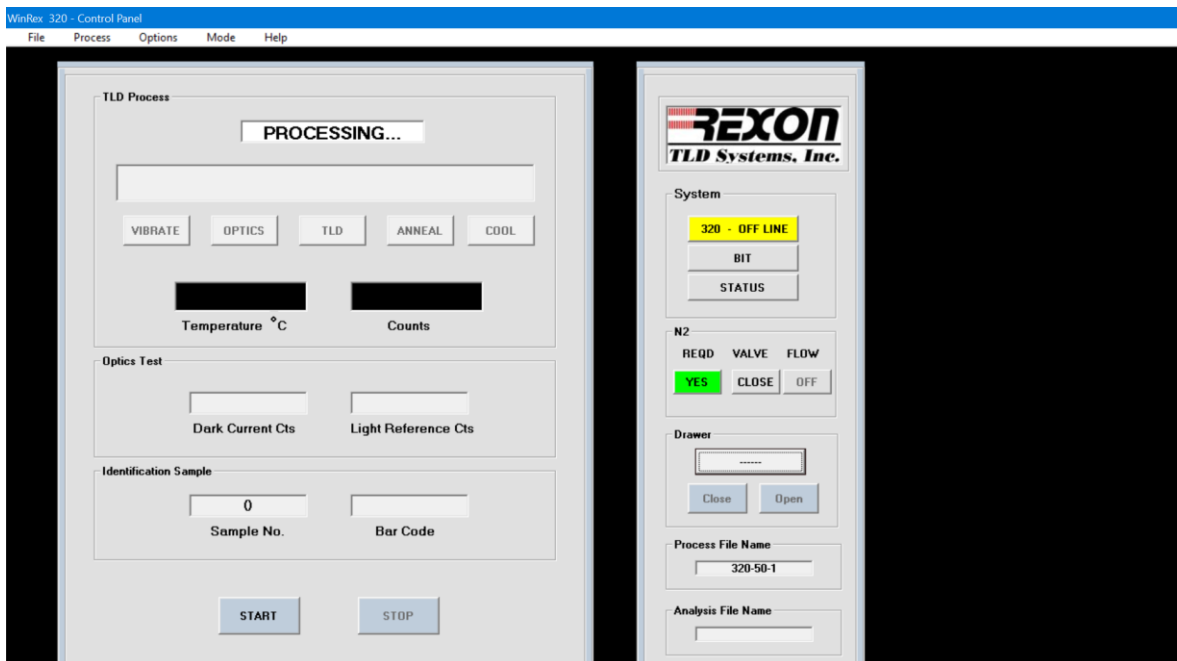
Process File Name:

Chọn File mẫu cho một chu trình TLD (Có đuôi .TYP)

Analysis File Name:

Chọn File Analysis cho một chu trình TLD, File này là nơi lưu lại thông tin các lần đo TLD (Có đuôi. ANL).

Màn hình bên trái hiển thị các số liệu đo của hệ thống theo thời gian đo: nhiệt độ, số đếm, mã số mẫu, mã số đĩa, ...



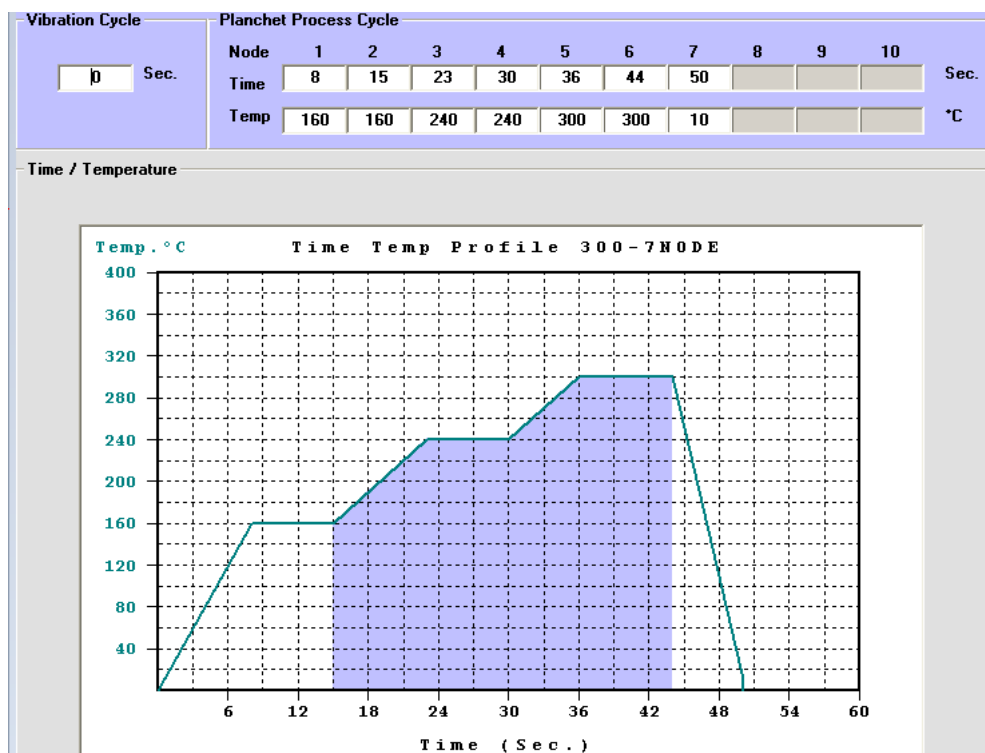
Hình 2.11. Màn hình điều khiển chính của Rexion UL-320

3. Tiếp theo, ta cài đặt các thông số phù hợp để thiết lập chương trình đo mẫu vật liệu nhiệt phát quang khảo sát chiếu xạ đối với nguồn neutron. Trong màn hình điều khiển chính chọn Process, màn hình Process Definition sau sẽ được hiển thị (xem Hình 2.12).

Tại đây cho phép cài đặt các thông số của một chu trình TLD như sau:

Planchet Process Cycle:

Cho phép cài đặt hồ sơ thời gian-nhiệt độ (Time-Temperature Profile, TTP). Với mỗi nút thời gian-nhiệt độ cài đặt, hồ sơ thời gian-nhiệt độ ở giữa màn hình sẽ thay đổi.



Hình 2.12. Màn hình cài thông số chu trình TLD

Chu trình đo phổ TL (đường cong TL – TL flow curve) của mẫu vật liệu đối với nguồn neutron gồm 7 bước (node):

- + Bước 1 với thời gian 8 giây (s) để tăng nhiệt độ từ nhiệt độ môi trường đến 160°C (tốc độ gia nhiệt là 17,5 °C/s);
- + Bước 2 với thời gian 7 s để giữ nhiệt độ ở 160 °C;
- + Bước 3 với thời gian 8 s tăng nhiệt độ từ 160 °C đến 240 °C (tốc độ gia nhiệt là 10 °C/s – Đây là bước gia nhiệt đối với bức xạ photon);
- + Bước 4 với thời gian 7 s để giữ nhiệt độ ở 240 °C;
- + Bước 5 với thời gian 6 s để tăng nhiệt độ từ 240 °C đến 300 °C (tốc độ gia nhiệt là 10 °C/s – Đây là bước gia nhiệt chính đối với bức xạ neutron);
- + Bước 6 với thời gian 8 s để giữ nhiệt độ ở 300 °C;
- + Bước 7 với thời gian 6 s để giảm nhiệt độ từ 300 °C đến nhiệt độ môi trường.

Anneal Cycle:

Cho phép cài đặt thời gian (sec) và nhiệt độ nung chất nhiệt quang trong máy.

Colling Cycle:

Cho phép cài đặt thời gian (sec) cho chu trình làm nguội chất TL trong máy trước khi khay chứa mẫu đưa mẫu TLD đã đo ra ngoài.

Limits:**PMT Optics:****Integration:**

Cho phép cài đặt thời gian (sec) bắt đầu đếm (START TIME) và thời gian kết thúc đếm (END TIME) trong phép tính tích phân cường độ nhiệt phát quang.

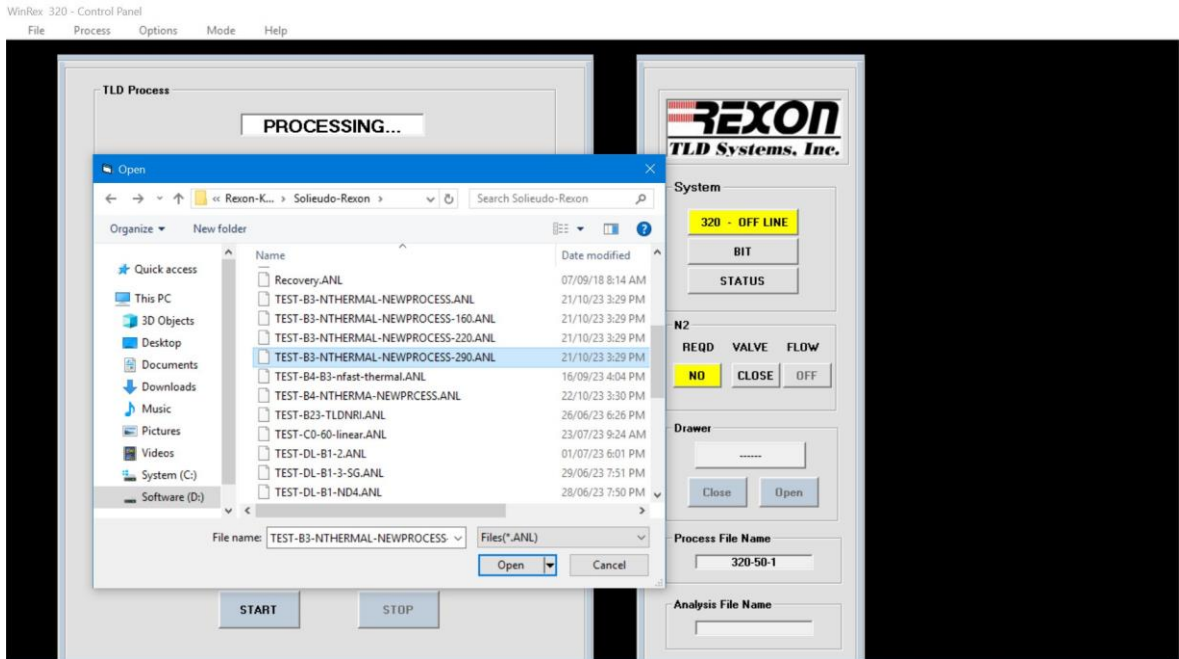
Nitrogen Required: NO.

Use SCFs: NO.

Khi các thông số trên thay đổi thì chúng phải được lưu lại với tên mới (đuôi .TYP). Để lưu lại với tên mới chọn "SAVE" và nhập trên file mới. Sau khi lưu chọn "CLOSE" để quay về màn hình trước.

4. Sau khi đã cài đặt các thông số xong ta chọn vị trí để lưu tập tin số liệu sau khi đo và đặt tên cho tập tin đó. Chọn File, Open Analysis File (hoặc click vào ô trống Analysis File Name) một cửa sổ xuất hiện, tại đây cho phép người điều khiển xác định vị trí lưu tập tin và đặt tên cho tập tin.

Nhập tên tập tin Analysis mới vào ô File name và nhấn "OK" (Để dễ dàng hơn trong việc quản lý tập tin Analysis, tên tập tin thường đặt theo cấu trúc TLD DD-MM-YY và có đuôi .ANL). Phần mềm sẽ tạo tập tin mới và hiển thị trong trường Analysis File Name ở màn hình điều khiển chính (xem Hình 2.13).



Hình 2.13. Tạo tập tin Analysis

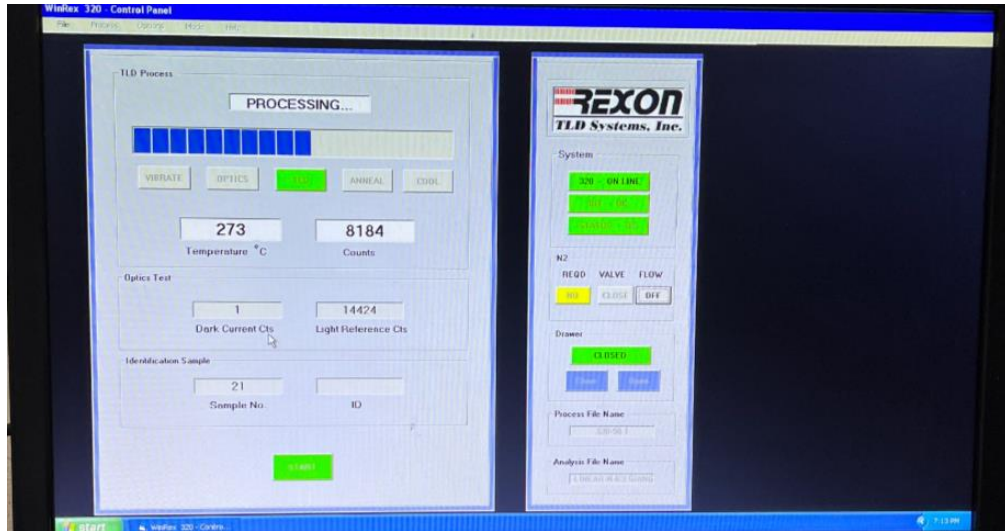
5. Bước cuối cùng chính là chu trình chạy mẫu. Vì thông tin chứa trong chất nhiệt phát quang chỉ được đo một lần duy nhất cho nên trước khi chạy chu trình đo TLD nên kiểm tra lại tất cả các thông số đã cài đặt phía trên.

Đối với mẫu bột ta đo là $K_2GdF_5:Tb$ với khối lượng xấp xỉ 20 mg được dàn đều trên khay mẫu và đặt nhẹ nhàng, đúng vị trí trên giá đặt khay mẫu. Khay mẫu được làm bằng thép không gỉ, hình chữ nhật, chiều rộng 28 mm, dài 38 mm, ở giữa là đĩa tròn có đường kính 15 mm và sâu 3 mm. Tại Viện NCHN hiện nay đang sử dụng khay mẫu mang mã số W384 (xem Hình 2.14).



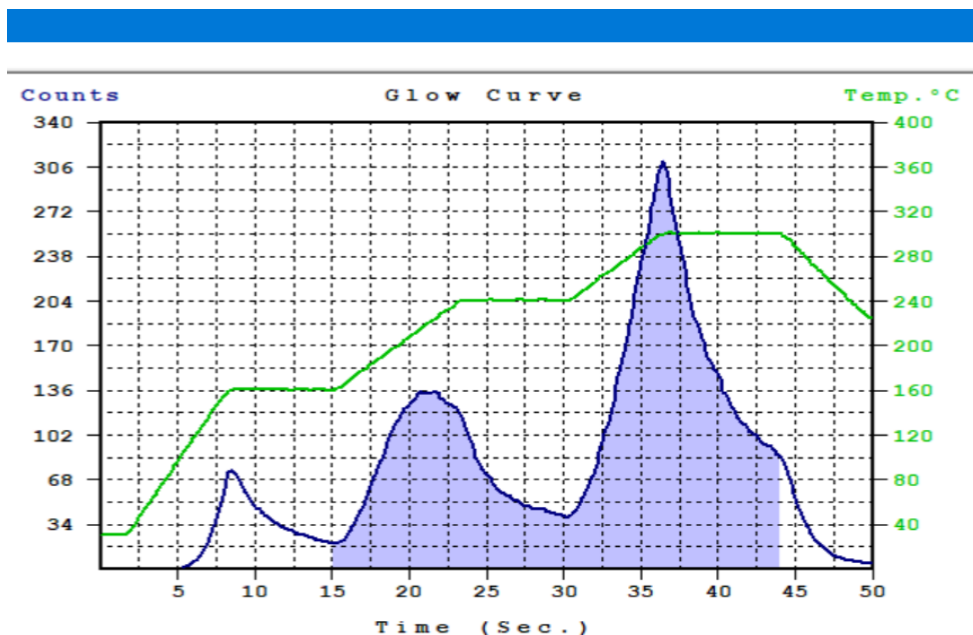
Hình 2.14. Khay mẫu W384

Trên thanh công cụ, chọn Mode, Run Sample. Màn hình chạy mẫu sẽ xuất hiện và ta nhấn tiếp nút “RUN SAMPLE” màn hình sẽ chuyển sang màn hình điều khiển chính và hiển thị các thông tin, trạng thái của chu trình TLD (nhiệt độ, số đếm, ...).



Hình 2.15. Màn hình chạy mẫu

Kết thúc chu trình đo, kết quả đo TLD sẽ hiển thị trên màn hình như: Phổ nhiệt phát quang, số xung tín hiệu TL tổng (count), số xung tín hiệu TL (count) tại đỉnh đo liều và những thông tin cơ bản khác...



Hình 2.16. Màn hình kết quả đo

Kết quả khảo sát cho thấy phổ TL gồm 02 đỉnh chính tách biệt nhau tại 02 mức nhiệt độ khác nhau:

- Đỉnh chính thứ nhất xuất hiện tại nhiệt độ khoảng 220 °C là đỉnh tín hiệu TL ứng với năng lượng bức xạ gamma từ nguồn Am-Be hấp thụ vào mẫu;
- Đỉnh chính thứ hai xuất hiện tại nhiệt độ khoảng 300 °C là đỉnh tín hiệu TL ứng với năng lượng bức xạ neutron từ nguồn Am-Be hấp thụ vào mẫu vật liệu.

2.3. PHƯƠNG PHÁP KHẢO SÁT MỘT SỐ ĐẶC TRƯNG CHÍNH CỦA VẬT LIỆU $K_2GdF_5:Tb$

2.3.1 Khảo sát độ lặp lại của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$

Độ lặp lại của phép đo là một đặc trưng cần thiết đối với các vật liệu ứng dụng để làm liều kế vì nó đảm bảo vật liệu đó có khả năng tái sử dụng nhiều lần, mang lại hiệu quả kinh tế.

Để khảo sát đặc trưng này, ta tiến hành với các bước như sau:

- Chuẩn bị 01 nhóm mẫu vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ với số lượng 10 mẫu/nhóm và các mẫu có khối lượng bằng nhau là 20 mg/mẫu, các mẫu vật liệu phải được ủ nhiệt một ngày trước khi đem chiếu xạ để xóa hết tín hiệu nội tại trong mẫu;
- Các mẫu này cùng lúc được chiếu bức xạ neutron nhiệt bằng nguồn Am-Be với liều tương đương thực chiếu là 10 mSv;
- Hoàn thành quá trình chiếu mẫu, lưu cả hai nhóm mẫu vào buồng chì trong khoảng thời gian 24 giờ để chờ mẫu chiếu đạt trạng thái ổn định;
- Thực hiện đo tín hiệu TL và đọc lấy kết quả của các mẫu đã được chiếu xạ bằng hệ đọc liều Rexion UL-320;
- Sau đó ủ nhiệt tất cả các mẫu để xóa hết tín hiệu dư trong mẫu đo;
- Tiến hành lặp lại việc chiếu xạ và đo mẫu. Quá trình này được lặp lại 10 lần;
- Sau đó dùng kết quả thu được tính toán độ lệch chuẩn và sai số chuẩn, dựa vào công thức (1.15) để tính độ lặp lại ở mỗi lần đo và độ lặp lại trung bình của 10 lần đo, kết quả của việc khảo sát phải đáp ứng tiêu chí về độ lặp lại được quy định trong tiêu chuẩn IEC 1066:1991 (nhỏ hơn hoặc bằng 7,5%).

2.3.2. Xác định ngưỡng liều cực tiểu

Xác định ngưỡng liều cực tiểu là phép đo giúp xác định mức liều nhỏ nhất mà thiết bị có thể ghi nhận được từ vật liệu. Quá trình xác định ngưỡng liều cực tiểu được tiến hành với các bước như sau:

- Chuẩn bị 01 nhóm mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đã được ủ nhiệt để xoá hết tín hiệu nội tại trong mẫu với số lượng 10 mẫu/nhóm với khối lượng bằng nhau (20 mg/mẫu);

- Sau khi hoàn thành quá trình ủ nhiệt các mẫu, chờ khoảng thời gian 24 giờ để chờ mẫu đạt trạng thái ổn định và tiến hành đọc mẫu lần thứ nhất bằng hệ đọc liều Rexion UL-320 để ghi nhận tín hiệu phát ra từ các mẫu;

- Lưu mẫu đã đo và bảo quản mẫu trong môi trường bình thường (nhiệt độ phòng, áp suất 1 atm) nơi đảm bảo không ảnh hưởng bởi nhiệt độ, tránh tiếp xúc trực tiếp ánh sáng, độ ẩm;

- Lần đo thứ hai được thực hiện sau khoảng thời gian 30 ngày;

- Thực hiện đo tín hiệu TL của các mẫu bằng hệ đọc liều Rexion UL-320;

- Tập hợp số liệu của hai lần đo để xử lý số liệu đo đạc và kết quả của việc khảo sát phải đáp ứng tiêu chí về ngưỡng liều cực tiểu phải thoả mãn công thức (1.16) được quy định trong tiêu chuẩn IEC 1066:1991 (nhỏ hơn hoặc bằng 0,1 mSv).

2.3.3. Khảo sát độ tuyến tính của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$

Theo khuyến cáo của IEC và IAEA, trong lĩnh vực ATBX thì dải liều quan tâm là từ 0,1 mSv đến 20 mSv. Khi khảo sát độ tuyến tính của vật liệu TL thì sẽ xác định được dải liều quan tâm.

Khi khảo sát độ đáp ứng tuyến tính liều bức xạ neutron của vật liệu, ta cần tiến hành các bước như sau:

- Chuẩn bị 04 nhóm mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đã được ủ nhiệt để xoá hết tín hiệu nội tại trong mẫu với số lượng 10 mẫu/nhóm với khối lượng bằng nhau 20 mg/mẫu;

- Thực hiện chiếu xạ các nhóm mẫu vật liệu với bức xạ neutron thuần nhiệt từ nguồn Am-Be với các mức liều bức xạ lần lượt là 3,24 mSv; 5,23 mSv; 7,85 mSv và 23,84 mSv;

- Hoàn thành quá trình chiếu mẫu, lưu cả 04 nhóm mẫu vào buồng chì trong khoảng thời gian 24 giờ để chờ mẫu chiếu đạt trạng thái ổn định;

- Thực hiện đo tín hiệu TL của các mẫu đã được chiếu xạ bằng hệ đọc liều Rexion UL-320 và ghi kết quả đo;

- Xử lý số liệu đo đạc và kết quả của việc khảo sát phải đáp ứng tiêu chí về độ đáp ứng tuyến tính liều bức xạ neutron được quy định trong tiêu chuẩn IEC 1066:1991 là: $0,9 \leq \frac{\bar{N} \pm 1}{C} \leq 1,1$.

- Vẽ đồ thị biểu diễn độ đáp ứng tuyến tính liều bức xạ neutron của vật liệu.

2.3.4 Khảo sát sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron

Để khảo sát sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron thì ta tiến hành như sau:

- Chuẩn bị 02 nhóm mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$, mỗi nhóm gồm 10 mẫu với khối lượng bằng nhau 20 mg/mẫu;

- Thực hiện chiếu xạ lần lượt 02 nhóm mẫu này với neutron nhiệt và neutron nhanh (mỗi nhóm mẫu chỉ chiếu một loại bức xạ) với cùng một liều 8 mSv.

- Sau đó tiến hành đo tất cả các nhóm mẫu đã được chiếu xạ neutron nhiệt, neutron nhanh và xử lý số liệu đo để so sánh độ chênh lệch giữa số đếm của mẫu được chiếu xạ đối với bức xạ neutron nhanh và các số đếm của mẫu được chiếu xạ đối với bức xạ neutron nhiệt.

2.3.5. Khảo sát độ tự chiếu xạ theo thời gian khi lưu trữ vật liệu

Để khảo sát độ tự chiếu xạ theo thời gian của vật liệu được tiến hành với các bước như sau:

- Chuẩn bị 02 nhóm mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đã được ủ nhiệt để xoá hết tín hiệu nội tại trong mẫu với số lượng 10 mẫu/nhóm với khối lượng bằng nhau 20 mg/mẫu;

+ Nhóm mẫu thứ nhất (nhóm 1) đóng vai trò là mẫu phong, được lưu trữ trong buồng chì cùng với mẫu khảo sát;

+ Nhóm mẫu thứ hai (nhóm 2) đóng vai trò là mẫu khảo sát độ tự chiếu xạ, được lưu trữ trong buồng chì cùng với mẫu phong;

- Lưu giữ cả hai nhóm mẫu trong buồng chì trong khoảng thời gian 30 ngày;

- Thực hiện đo tín hiệu TL của cả hai nhóm mẫu bằng hệ đọc liều Rexion UL-320;

- Xử lý số liệu đo đạc và kết quả của việc khảo sát phải đáp ứng tiêu chí về độ tự chiếu xạ của vật liệu phải thỏa mãn công thức (1.18) được quy định trong tiêu chuẩn IEC 1066:1991 (nhỏ hơn hoặc bằng 0,1 mSv).

2.3.6. Khảo sát sự suy giảm tín hiệu của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$

Khi thực hiện đánh giá sự suy giảm tín hiệu của vật liệu, ta đánh giá được mức độ suy giảm tín hiệu không mong muốn do bản chất của vật liệu cũng như các điều kiện ảnh hưởng của môi trường. Đối với vật liệu $K_2GdF_5:Tb$, đây là loại bột TL được chế tạo mới hoàn toàn nên ta thực hiện khảo sát kéo dài trong vòng ba tháng để đảm bảo kết quả tốt nhất trong thực tế. Phương thức khảo sát fading được trình bày như sau:

- Chuẩn bị 70 mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đã được ủ nhiệt để xóa hết tín hiệu nội tại trong mẫu với số lượng 10 mẫu/nhóm với khối lượng bằng nhau (20 mg/mẫu); Các mẫu được lưu trữ trong buồng chì để không bị ảnh hưởng của các bức xạ từ môi trường.

- Thực hiện chiếu bức xạ neutron nhiệt từ nguồn Am-Be với cùng một giá trị liều chuẩn là 3 mSv.

- Hoàn thành quá trình chiếu mẫu, lưu các nhóm mẫu vào buồng chì trong khoảng thời gian 24 giờ để chờ mẫu chiếu đạt trạng thái ổn định.

- Thực hiện chia 70 mẫu vật liệu trên thành 7 nhóm, mỗi nhóm 10 mẫu và đo tín hiệu TL của các nhóm mẫu bằng hệ đọc liều Rexion UL-320 tại các thời điểm khác nhau, cụ thể như sau:

- + Nhóm 1: 1 ngày sau khi chiếu.
- + Nhóm 2: 7 ngày sau khi chiếu.
- + Nhóm 3: 14 ngày sau khi chiếu.
- + Nhóm 4: 21 ngày sau khi chiếu.
- + Nhóm 5: 30 ngày sau khi chiếu.
- + Nhóm 6: 60 ngày sau khi chiếu.
- + Nhóm 7: 90 ngày sau khi chiếu.

- Sự suy giảm tín hiệu của các vật liệu TL cũng cần phải thỏa mãn các điều kiện được trình bày trong Mục 1.5.6.

- Sau khi hoàn thành quá trình đo tất cả các mẫu khảo sát, tiến hành xử lý số liệu để xác định tỉ lệ phần trăm và vẽ đồ thị biểu diễn độ suy giảm tín hiệu TL theo thời gian của vật liệu.

2.4. TÓM TẮT CHƯƠNG 2

Chương 2 đã tìm hiểu về trang thiết bị và phương pháp thí nghiệm tìm hiểu các đặc trưng của vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$, cụ thể như sau:

- Tìm hiểu nguồn chiếu bức xạ neutron Am-Be.
- Tìm hiểu dụng cụ đo khối lượng, lò nung mẫu và hệ đo liều Rexion UL-320.
- Cách bố trí thí nghiệm để chiếu mẫu.
- Nêu được qui trình đo mẫu vật liệu khi đã chiếu xạ.
- Nêu được phương pháp đo nhằm xác định các đặc trưng của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ như: độ lặp lại về liều, ngưỡng nhạy của vật liệu, độ tuyến tính, sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron, độ tự chiếu xạ theo thời gian và sự suy giảm tín hiệu của vật liệu.

Chương 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Các đặc trưng kỹ thuật của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ dạng bột dùng đo liều bức xạ cần khảo sát phải thỏa các chuẩn chung của quốc tế về TLD. Trong luận văn đã thực hiện đánh giá một số đặc trưng chính của vật liệu dựa vào tiêu chuẩn IEC 1066:1991 để tiến tới nghiên cứu chế tạo TLD dùng vật liệu này trong tương lai.

3.1. Độ lặp lại về liều bức xạ

Khi khảo sát độ lặp lại về liều khi chiếu bức xạ neutron nhiệt với mức liều bức xạ là 10 mSv trên mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$, kết quả sau 10 lần đo được thể hiện ở các bảng số liệu trình bày trong ở Phụ lục 1 và độ lặp lại trung bình sau 10 lần đo thể hiện ở Bảng 3.1.

Bảng 3.1. Tổng hợp số liệu đo trung bình của 10 lần đo khảo sát độ lặp lại

| Stt | Lần đo mẫu | Liều chiếu (mSv) | Số đếm trung bình (counts) |
|-----|----------------------------|------------------|----------------------------|
| 1 | Lần đo thứ 01 | 10 | 11.330 |
| 2 | Lần đo thứ 02 | 10 | 12.461 |
| 3 | Lần đo thứ 03 | 10 | 10.324 |
| 4 | Lần đo thứ 04 | 10 | 11.480 |
| 5 | Lần đo thứ 05 | 10 | 12.646 |
| 6 | Lần đo thứ 06 | 10 | 12.480 |
| 7 | Lần đo thứ 07 | 10 | 12.391 |
| 8 | Lần đo thứ 08 | 10 | 12.758 |
| 9 | Lần đo thứ 09 | 10 | 12.102 |
| 10 | Lần đo thứ 10 | 10 | 11.905 |
| | Trung bình (counts) | | 11.988 |
| | SD | | 717 |
| | CV (%) | | 5,98 |
| | | | 0,074 |

Nhận xét:

- Từ kết quả tính toán số đo của các mẫu chiếu bức xạ neutron trình bày ở Phụ lục 1, ta thấy độ lặp lại qua mỗi lần đo nằm trong khoảng từ 0,068 đến 0,075 đều đáp ứng tiêu chí quy định theo tiêu chuẩn IEC 1066:1991 (độ lặp lại $\leq 0,075$).

- Từ Bảng 3.1, kết quả tính toán độ lặp lại số đo trung bình của các mẫu chiếu bức xạ neutron qua 10 lần đo lặp lại là 0,074 cũng đáp ứng tiêu chí quy định theo tiêu chuẩn IEC 1066:1991 (độ lặp lại $\leq 0,075$).

- Từ các kết quả trên, chứng tỏ vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ này hoàn toàn đủ điều kiện sử dụng lặp lại nhiều lần vẫn cho được kết quả tốt. Đây là đặc tính tái sử dụng mà mọi vật liệu TL dạng bột đều cần có.

3.2. Ngưỡng liều cực tiểu

Kết quả của việc khảo sát ngưỡng liều cực tiểu sau 24 giờ và sau 30 ngày được trình bày ở Bảng 3.2.

Bảng 3.2. Kết quả đo ngưỡng liều cực tiểu

| Stt | Tên mẫu | Số đo N1 - lần đo thứ nhất (counts) | Số đếm N2 - lần đo thứ hai (sau 30 ngày) (counts) | Số đếm tính cho 01 ngày (counts) |
|-----|---|-------------------------------------|---|----------------------------------|
| 1 | Mẫu -01 | 1.538 | 34.036 | 1.135 |
| 2 | Mẫu -02 | 1.485 | 33.763 | 1.125 |
| 3 | Mẫu -03 | 1.493 | 33.563 | 1.119 |
| 4 | Mẫu -04 | 1.515 | 33.669 | 1.122 |
| 5 | Mẫu -05 | 1.531 | 34.057 | 1.135 |
| 6 | Mẫu -06 | 1.578 | 33.167 | 1.106 |
| 7 | Mẫu -07 | 1.583 | 33.510 | 1.117 |
| 8 | Mẫu -08 | 1.501 | 34.434 | 1.148 |
| 9 | Mẫu -09 | 1.501 | 34.767 | 1.159 |
| 10 | Mẫu -10 | 1.697 | 33.351 | 1.112 |
| | Trung bình \bar{N} (counts) | | 33.832 | 1.128 |
| | Độ lệch chuẩn SD (counts) | | 495 | 17 |

| | | | | |
|--|--|-----------------|--|---------------|
| | Trung bình/tháng \bar{N}_{month} (counts) | | | 34.301 |
| | Độ lệch chuẩn SD/tháng SD_{month} (counts) | | | 502 |
| | $SD_{\text{month}} * SD_{30 \text{ days}} / \bar{N}_{30 \text{ days}}$ (counts) | | | 7,357 |
| | Độ không đảm bảo đo Uc (counts) | 502,402 | | |
| | Ngưỡng số đếm phát hiện cực tiểu D_L (counts) | 1135,429 | | |
| | Ngưỡng liều phát hiện cực tiểu D_L (mSv) | 0,095 | | |

Nhận xét: Từ kết quả khảo sát và áp dụng công thức tính toán ngưỡng phát hiện cực tiểu đối với liều bức xạ (ngưỡng nhạy – Detection limit) của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ là 0,095 mSv đã thoả mãn tiêu chí quy định của tiêu chuẩn IEC 1066:1991:

$$\left(t_{\frac{\alpha}{2}} \cdot SD\right) = 0,095 \text{ mSv} \leq H; \text{ với } H = 0,1 \text{ mSv}$$

3.3. Dải đáp ứng liều tuyến tính

Kết quả khảo sát độ đáp ứng tuyến tính theo liều bức xạ neutron nhiệt được trình bày ở các Bảng 3.3 và Bảng 3.4.

Bảng 3.3. Số liệu đo mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đối với 04 mức liều chiếu mẫu khác nhau của bức xạ neutron nhiệt

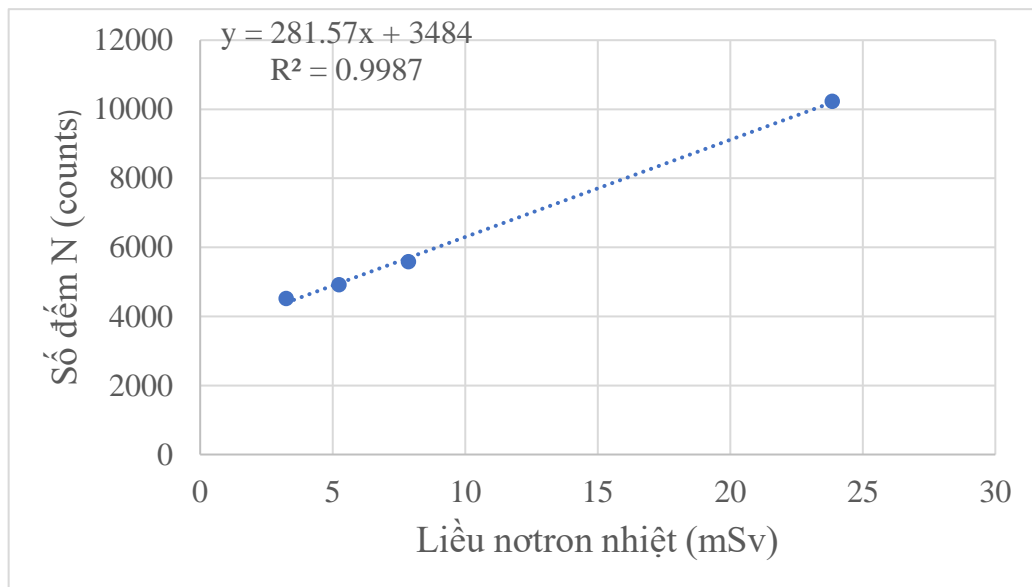
| Stt | Tên mẫu vật liệu | Số đo N đối với các mức liều chiếu chuẩn khác nhau (counts) | | | |
|-----|------------------|---|----------|----------|-----------|
| | | 3,24 mSv | 5,23 mSv | 7,85 mSv | 23,84 mSv |
| 1 | MC-01 | 4.412 | 5.223 | 5.186 | 10.152 |
| 2 | MC-02 | 4.235 | 5.672 | 6.166 | 10.130 |
| 3 | MC-03 | 4.095 | 4.145 | 5.833 | 12.066 |
| 4 | MC-04 | 4.680 | 4.526 | 6.411 | 9.438 |
| 5 | MC-05 | 4.695 | 5.310 | 5.308 | 8.074 |
| 6 | MC-06 | 4.291 | 4.173 | 4.840 | 11.202 |
| 7 | MC-07 | 4.783 | 4.365 | 5.406 | 10.677 |
| 8 | MC-08 | 4.544 | 4.985 | 5.673 | 10.742 |

| | | | | | |
|-------------------------|-------|--------------|--------------|--------------|---------------|
| 9 | MC-09 | 4.537 | 5.097 | 5.988 | 9.606 |
| 10 | MC-10 | 4.874 | 5.697 | 5.041 | 10.158 |
| Trung bình | | 4.515 | 4.919 | 5.585 | 10.225 |
| Độ lệch chuẩn SD | | 253 | 584 | 513 | 1.078 |

Bảng 3.4. Kết quả đáp ứng tuyến tính liều của mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đối với bức xạ neutron

| Stt | Liều chiếu (mSv) | Số đếm trung bình \bar{N} (counts) | Độ lệch chuẩn SD (counts) | Độ rộng một nửa khoảng tin cậy 95% I (counts) | Số đếm quy ước C (counts) | Tiêu chí IEC 1066:1991 | |
|-----|------------------|--------------------------------------|---------------------------|---|---------------------------|----------------------------------|----------------------------------|
| | | | | | | $\frac{\bar{N} - 1}{C} \geq 0,9$ | $\frac{\bar{N} + 1}{C} \leq 1,1$ |
| 1 | 3,24 | 4.515 | 253 | 181 | 4.396 | 0,99 | 1,07 |
| 2 | 5,23 | 4.919 | 584 | 417 | 4.957 | 0,91 | 1,08 |
| 3 | 7,85 | 5.585 | 513 | 367 | 5.694 | 0,92 | 1,05 |
| 4 | 23,84 | 10.225 | 1.078 | 771 | 10.197 | 0,93 | 1,08 |

Từ số liệu của Bảng 3.4 ta vẽ đồ thị biểu diễn đáp ứng tuyến tính liều bức xạ neutron (xem Hình 3.1).



Hình 3.1. Đồ thị biểu diễn đáp ứng tuyến tính liều bức xạ của mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đối với neutron nhiệt

Nhận xét: Quan sát Hình 3.1 ta thấy rằng đồ thị biểu diễn đáp ứng tuyến tính liều có hệ số tương quan R^2 rất tốt ($R^2 = 0,9987$), điều này chứng tỏ là vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đáp ứng tuyến tính liều bức xạ neutron gần như tuyệt đối và số liệu ở Bảng 3.4 cho thấy kết quả tính toán khoảng tin cậy 95% giá trị trung bình của số đếm ứng với các mức liều neutron từ 0,1 mSv đến 20 mSv đều thỏa mãn tiêu chí đáp ứng tuyến tính liều của tiêu chuẩn IEC 1066:1991.

3.4. Sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron

Khi khảo sát sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng ở cùng một liều chiếu là 8 mSv, ta thu được kết quả được trình bày ở Bảng 3.5 và tỉ lệ phần trăm giữa neutron nhanh và neutron nhiệt trình bày ở Bảng 3.6.

Bảng 3.5. Số liệu đo đạc của các mẫu vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ chiếu bức xạ neutron nhanh và neutron nhiệt

| Stt | Tên mẫu khảo sát | Số đếm neutron nhanh (counts) | Số đếm neutron nhiệt (counts) |
|-----------------------------------|------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 1 | MC-01 | 401 | 5.708 |
| 2 | MC-02 | 402 | 6.187 |
| 3 | MC-03 | 386 | 6.420 |
| 4 | MC-04 | 395 | 7.056 |
| 5 | MC-05 | 407 | 5.842 |
| 6 | MC-06 | 382 | 5.928 |
| 7 | MC-07 | 374 | 5.950 |
| 8 | MC-08 | 381 | 6.243 |
| 9 | MC-09 | 379 | 6.590 |
| 10 | MC-10 | 395 | 5.548 |
| Số đếm trung bình (counts) | | 390 | 6.147 |
| Độ lệch chuẩn SD (counts) | | 11 | 452 |
| CV (%) | | 2,89 | 7,36 |

Bảng 3.6. Kết quả tỉ số số đếm của bức xạ neutron nhanh và neutron nhiệt của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$

| Liều chiếu (mSv) | Số đếm neutron nhiệt (counts) | Số đếm neutron nhanh (counts) | Tỉ lệ phần trăm $\frac{\text{neutron nhanh}}{\text{neutron nhiệt}}$ |
|------------------|-------------------------------|-------------------------------|---|
| 8 | 6.147 | 390 | 6,35% |

Nhận xét:

- Tỉ lệ phần trăm số đo của mẫu $K_2GdF_5:Tb$ đối với bức xạ neutron nhanh và neutron nhiệt là rất nhỏ (6,35%). Do vậy, ta có thể nhận thấy vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ có độ nhạy rất thấp khi chiếu bức xạ neutron nhanh;

- Số đếm của mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ chiếu với bức xạ neutron nhiệt lớn gấp xấp xỉ 16 lần so với bức xạ neutron nhanh. Điều này thể hiện sự phụ thuộc của kết quả đo tín hiệu TL đối với vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ vào năng lượng bức xạ neutron.

3.5. Độ tự chiếu xạ theo thời gian khi lưu trữ vật liệu

Khi thực hiện khảo sát độ tự chiếu xạ theo thời gian đối với vật liệu $K_2GdF_5:Tb$, ta thu được kết quả được trình bày ở Bảng 3.7.

Bảng 3.7. Kết quả của việc khảo sát độ tự chiếu xạ theo thời gian

| Stt | Tên mẫu | Số đếm N (counts) | Tên mẫu | Số đếm N (counts) |
|-----|-----------------|-------------------|---------|-------------------|
| 1 | Mẫu khảo sát-01 | 19.512 | BG-01 | 19.211 |
| 2 | Mẫu khảo sát-02 | 20.943 | BG-02 | 19.109 |
| 3 | Mẫu khảo sát-03 | 18.694 | BG-03 | 18.304 |
| 4 | Mẫu khảo sát-04 | 18.070 | BG-04 | 19.623 |
| 5 | Mẫu khảo sát-05 | 20.165 | BG-05 | 19.243 |
| 6 | Mẫu khảo sát-06 | 19.512 | BG-06 | 19.175 |
| 7 | Mẫu khảo sát-07 | 18.943 | BG-07 | 19.843 |
| 8 | Mẫu khảo sát-08 | 20.694 | BG-08 | 19.803 |
| 9 | Mẫu khảo sát-09 | 18.070 | BG-09 | 19.510 |

| | | | | |
|----|--|---------------|--------------------------------|---------------|
| 10 | Mẫu khảo sát-10 | 20.165 | BG-10 | 19.946 |
| | \bar{N} (counts) | 19.477 | \bar{N} (counts) | 19.377 |
| | SD (counts) | 972 | | |
| | l (counts) (nửa độ rộng khoảng tin cậy) | 690 | | |
| | $(\bar{N} + l) - N_{BG}$ (counts) | 1072 | $(\bar{N} + l) - E_{bg}$ (mSv) | 0,093 |

Nhận xét:

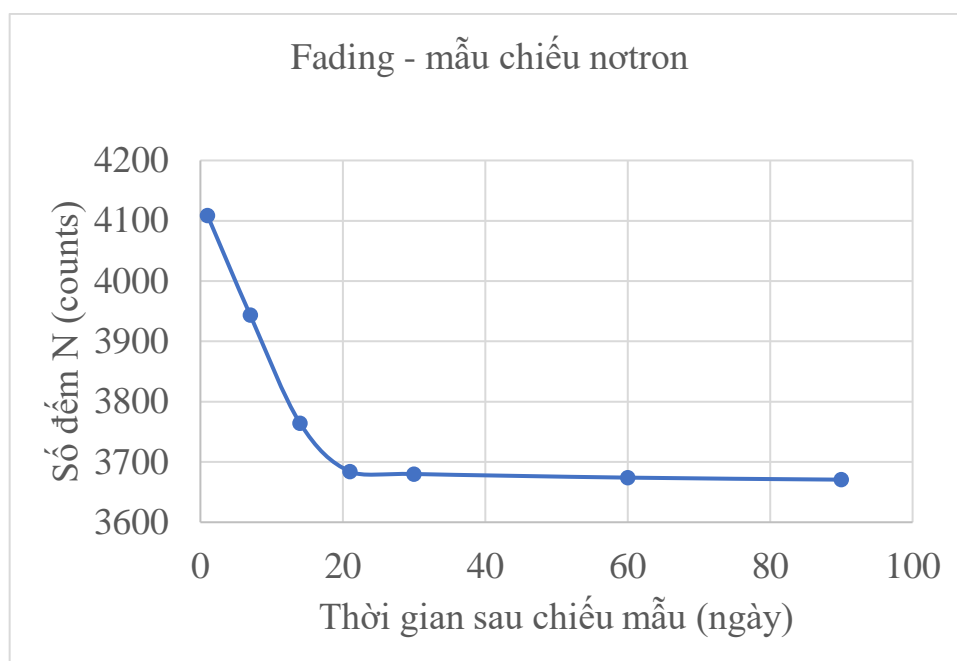
Từ bảng số liệu trên, sau khi áp dụng công thức (1.20) ta tính được độ tự chiếu xạ là 0,093 và ta thấy $0,093 \leq H$; với $H = 0,1$ mSv, kết quả này thoả mãn tiêu chí độ tự chiếu xạ của IEC 1066:1991.

3.6. Sự suy giảm tín hiệu nhiệt phát quang theo thời gian

Kết quả đo từng nhóm mẫu vật liệu trong những khoảng thời gian khác nhau được trình bày trong các bảng của Phụ lục 3. Để khảo sát được sự suy giảm tín hiệu của liều kế (Fading) theo thời gian khác nhau, ta lấy giá trị liều đo được sau 24 giờ sau khi chiếu làm giá trị tham chiếu cho các giá trị đo khác. Kết quả tổng hợp khảo sát sự suy giảm tín hiệu của liều kế được trình bày trong Bảng 3.8 và đồ thị biểu diễn độ suy giảm tín hiệu theo thời gian của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ (xem Hình 3.2).

Bảng 3.8. Kết quả khảo sát độ suy giảm tín hiệu theo thời gian của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đối với bức xạ neutron

| Số ngày sau chiếu mẫu | Số đo N (counts) | Tỉ lệ suy giảm tín hiệu (%) |
|-----------------------|------------------|-----------------------------|
| 1 | 4109 | 0,00 |
| 7 | 3944 | 4,02 |
| 14 | 3764 | 8,39 |
| 21 | 3684 | 10,33 |
| 30 | 3680 | 10,43 |
| 60 | 3674 | 10,58 |
| 90 | 3671 | 10,66 |



Hình 3.2. Đồ thị biểu diễn độ suy giảm tín hiệu theo thời gian của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đối với bức xạ neutron

Nhận xét:

Theo IEC-1066:1991 thì yêu cầu sự sai khác giữa giá trị liều tính toán với liều thực chiếu không được hơn các tiêu chuẩn sau:

$\leq 5\%/30$ ngày dưới điều kiện thử chuẩn ($t^\circ = 18-22^\circ\text{C}$; $P = 86-106$ kPa; $RH = 50-60\%$).

$\leq 10\%/90$ ngày dưới điều kiện thử chuẩn.

$\leq 20\%/30$ ngày dưới điều kiện $t^\circ = 50^\circ\text{C}$; $RH = 65\%$.

$\leq 20\%/30$ ngày dưới điều kiện $t^\circ = 20^\circ\text{C}$; $RH = 90\%$.

Dựa vào số liệu được trình bày trong Bảng 3.8 và đồ thị khảo sát sự suy giảm tín hiệu (Xem Hình 3.2) qua các khoảng thời gian xác định, ta thấy rằng tín hiệu sau khoảng 90 ngày có suy giảm. Mức độ suy giảm của tín hiệu nhỏ và luôn dưới 10% ở điều kiện làm việc bình thường và lưu trữ liều kế trong buồng chì. Mức độ suy giảm tín hiệu này cũng hoàn toàn đáp ứng yêu cầu của IEC đã đặt ra là luôn luôn dưới 10% trong khoảng thời gian 3 tháng.

3.7. TÓM TẮT CHƯƠNG 3

Trong chương 3 này, tác giả đã tiến hành đo mẫu và thực hiện các phép tính toán, phân tích số liệu từ đó đối chiếu kết quả với các tiêu chuẩn IEC 1066:1991 (và IEC 62387:2012) về các đặc trưng định liều chính của vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ như : độ lặp lại về liều, ngưỡng liều cực tiểu, dải đáp ứng liều tuyến tính, sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron, độ tự chiếu xạ theo thời gian khi lưu trữ vật liệu, sự suy giảm tín hiệu theo thời gian. Các kết quả thu được từ thực nghiệm đều thỏa mãn các qui định trong tiêu chuẩn chuẩn IEC 1066:1991 (và IEC 62387:2012).

KẾT LUẬN VÀ KIẾN NGHỊ

1. KẾT LUẬN

Sau thời gian thực hiện, Luận văn đã hoàn thành mục tiêu đặt ra, và thu được các kết quả chính như sau:

1.1. Về lý thuyết

Trong luận văn đã tìm hiểu về khái niệm, các đặc điểm của hiện tượng nhiệt phát quang; giải thích về hiện tượng nhiệt phát quang; ứng dụng và một số vấn đề liên quan đến nhiệt phát quang; tìm hiểu một số khái niệm các đại lượng và đơn vị đo dùng trong đo liều bức xạ; một số đặc trưng định liều của vật liệu cần khảo sát. Trong luận văn còn tìm hiểu về các thiết bị và cách bố trí thí nghiệm; qui trình đo và phương pháp xác định một số đặc trưng kỹ thuật quan trọng của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$. Đây là các vấn đề đã được tìm hiểu và tổng quan trong luận văn, có ý nghĩa làm nền tảng về lý thuyết và phương pháp hữu ích phục vụ cho toàn bộ quá trình thực hiện thành công mục tiêu và các nội dung nghiên cứu đã đặt ra của đề tài.

1.2. Về thực nghiệm

Đã tiến hành thí nghiệm khảo sát một số đặc trưng chính về định liều của vật liệu $K_2GdF_5:Tb$. Từ đó đánh giá, so sánh với tiêu chuẩn IEC 1066:1991 (và IEC 62387:2012) và thu được kết quả như sau:

a. Về giá trị độ lặp lại về liều: Thực hiện chiếu xạ bức xạ neutron trên nguồn Am-Be với mức liều bức xạ 10 mSv. Kết quả tính toán độ lặp lại là $R = 0,074$ – thỏa mãn tiêu chí về độ lặp lại theo quy định của tiêu chuẩn IEC 1066:1991.

b. Về ngưỡng phát hiện cực tiểu: Ngưỡng phát hiện cực tiểu đối vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ là 0,095 mSv - thỏa mãn tiêu chí quy định của tiêu chuẩn IEC 1066:1991.

c. Về đáp ứng liều tuyến tính của vật liệu: Kết quả khảo sát cho thấy vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ đáp ứng tuyến tính liều bức xạ neutron với các mức liều từ 0,1 mSv đến 20 mSv - thỏa mãn tiêu chí đáp ứng tuyến tính liều của tiêu chuẩn IEC 1066:1991.

d. Về đặc trưng sự phụ thuộc của liều bức xạ vào năng lượng neutron: Tỷ lệ phần trăm số đo của mẫu $K_2GdF_5:Tb$ đối với bức xạ neutron nhanh và neutron nhiệt là rất nhỏ (6,35%), ngoài ra số đếm của mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ chiếu với bức xạ neutron nhiệt lớn gấp xấp xỉ 16 lần so với bức xạ neutron nhanh - Điều

này thể hiện sự phụ thuộc của kết quả đo tín hiệu TL đối với vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ vào năng lượng bức xạ neutron.

e. Đối với đặc trưng độ tự chiếu xạ theo thời gian khi lưu trữ vật liệu: Kết quả khảo sát cho giá trị là 0,093 - thoả mãn tiêu chí độ tự chiếu xạ của IEC 1066:1991.

f. Sự suy giảm tín hiệu nhiệt phát quang theo thời gian (fading): Kết quả khảo sát cho thấy mức độ suy giảm tín hiệu sau khoảng 90 ngày là cỡ 11% - thoả mãn tiêu chí của IEC 1066:1991.

2. KIẾN NGHỊ

Vì thời gian có hạn nên đề tài chưa nghiên cứu đầy đủ các đặc trưng của vật liệu nhiệt phát quang $K_2GdF_5:Tb$ để hướng tới nghiên cứu chế tạo liều kế cá nhân dùng vật liệu này trong tương lai, như:

- Khảo sát sự tán xạ và hấp thụ của bức xạ neutron (nhiệt và nhanh) lên vật liệu khi dùng các phantom (PMMA và nước).

- Đánh giá độ không bảo đảm đo về các đặc trưng định liều bức xạ neutron đối với vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ dạng bột.

- Khảo sát các yếu tố ảnh hưởng khác đối với vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ như: Ánh sáng, độ ẩm, tia UV, ...

- Khảo sát các đặc trưng định liều khi chiếu với nguồn neutron ^{252}Cf (có năng lượng neutron trung bình cỡ 2 MeV).

- Khảo sát và đánh giá sự phụ thuộc của năng lượng neutron (tại một số giá trị năng lượng đơn năng của neutron) khi chiếu xạ vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ kênh trên ngang Lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Bộ KH&CN, 2012, *Thông tư số 19/2012/TT-BKH&CN Quy định về kiểm soát và bảo đảm an toàn bức xạ trong chiếu xạ nghề nghiệp và chiếu xạ công chúng*, Bộ KH&CN, Hà Nội.
- [2] H.X.Vinh, V.Hao, T.V.Tuat, D.P.T.Tien, V.T.T.HA, B.T.Huy, 2011, *Thermoluminescent properties of $Li_2B_4O_7$* , Nha Trang, Workshop, pp.226–233.
- [3] Vu Thi Thai Ha, Nguyen Thi Quy Hai, Nguyen Ngoc Long, Le Van Vu 2007, Preparation and characteristics of LiF:Mg,Cu,Na,Si thermoluminescent materia, *VNU Journal of Science: Mathematics - Physics*, Vol.23, pp.225-231.
- [4] Bùi Thế Huy, 2009, *Nghiên cứu điều chế và tính chất quang của vật liệu nhiệt phát quang có chứa Lithium để sử dụng trong thiết bị đo liều*, Luận án tiến sĩ Vật lý, Viện Hàn lâm KH&CN Việt Nam (VAST).
- [5] Vũ Thị Thái Hà, 2010, *Nghiên cứu chế tạo, tính chất và khả năng ứng dụng vật liệu nhiệt phát quang họ LiF*, Luận án tiến sĩ Vật lý, Viện Khoa học Vật liệu, VAST.
- [6] Bùi Thế Huy, Vũ Xuân Quang, Bùi Minh Lý, Ngô Văn Tâm, Phan Tiến Dũng, 2007, Chế tạo và nghiên cứu tính chất nhiệt huỳnh quang vật liệu LiF:Mg,Cu,P, *Tuyển tập báo cáo Hội nghị “Vật lý chất rắn toàn quốc lần thứ V”*, TP. Vũng Tàu, Tr.1019-1022.
- [7] Trương Thùy Dương, 2015, *Nghiên cứu áp dụng định liều cá nhân đối với bức xạ gamma và tia X cho nhân viên bức xạ dùng vật liệu nhiệt phát quang $CaSO_4:Dy$ dạng bột*, Luận văn thạc sĩ Vật lý, Đại học Khoa học tự nhiên, Đại học Quốc gia TP. Hồ Chí Minh.
- [8] Xuan Vinh. Ha, Chi Thang. Nguyen and Phan Thao Tien. Doan, 2014, Preparation of Tb^{3+} -doped K_2GdF_5 used to neutron dosimetry, *Nuclear Science and Technology*, VAES-VINATOM, 4(3), pp.30-37, ISSN 1810-5408.
- [9] Edna Carla da Silva, Nicholas M. Khaidukov, Joelan A. L. Santos, Eudice C. Vilela and Luiz Oliveira de Faria, 2009, Investigation of the thermoluminescent response of $K_2GdF_5:Dy^{3+}$ crystals to photon radiation and neutron fields, *2009 International Nuclear Atlantic Conference – INAC 2009*, Rio de Janeiro, RJ, Brazil, September 27 to October 2, 2009, ISBN 978-85-99141-03-8.

- [10] E. C. Silva, N. M. Khaidukov, E. C. Vilela, L. O. Faria, 2013, Preliminary TL Studies of $K_2GdF_5:Dy^{3+}$ exposed to photon and neutron radiation fields, *Radiation measurements*, Vol.59, December 2013, pp.119-122, Elsevier, <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2013.06.005>.
- [11] Hà Xuân Vinh và cộng sự, 2018, *Nghiên cứu và ứng dụng thử nghiệm liều kế K_2GdF_5 pha tạp Tb trong lĩnh vực đo liều bức xạ hạt nhân đáp ứng với các tia gamma, beta, neutron*, Báo cáo tổng kết đề tài nghiên cứu cấp Viện Hàn lâm, VAST.
- [12] Hà Xuân Vinh, Đoàn Phan Thảo Tiên, Nguyễn Chí Thắng, Phạm Xuân Hải, Lương Ngọc Hạnh, 2014, Chế tạo và nghiên cứu tính chất nhiệt phát quang của K_2GdF_5 pha tạp đất hiếm ứng dụng trong đo liều neutron, *Tuyển tập báo cáo Hội nghị “Advances in Engineering Physics and its Applications - Những tiến bộ trong Vật lý Kỹ thuật và Ứng dụng”*, tr.311–316, ISBN 978-604-913-232-2.
- [13] Hà Xuân Vinh, Đoàn Phan Thảo Tiên, Nguyễn Chí Thắng, Phạm Xuân Hải, Lương Ngọc Hạnh, 2014, Xác định thành phần bức xạ bằng phương pháp nhiệt phát quang trên vật liệu K_2YF_5 và K_2GdF_5 pha tạp Tb^{3+} , *Tuyển tập báo cáo Hội nghị “Những tiến bộ trong Vật lý Kỹ thuật và Ứng dụng”*, tr.410–415, ISBN 978-604-913-232-2.
- [14] Doan Phan Thao Tien, Tran Thi Thanh Lam, Tran Dinh Hung, Nguyen Thi Minh Nguyet and Ha Xuan Vinh, 2019, Study on energy transfer properties of Gd-Tb ion pairs in $K_2GdF_5:Tb$ for use in neutron dosimetry, *Report in the 6th International Conference on Engineering Physics and its Application*, 22-26 October 2019, Thai Nguyen city, Vietnam.
- [15] Ha Xuan Vinh, Nguyen Chi Thang, Doan Phan Thao Tien and Tran Hoan Vu, 2018, Study on thermoluminescence properties of $K_2GdF_5:Tb^{3+}$, *Vietnam Journal of Science and Technology*, 56 (1A), pp.102-109, VAST.
- [16] Nguyễn Văn Hùng và cộng sự, 2022, *Nghiên cứu các đặc trưng nhạy bức xạ photon và neutron đối với vật liệu $K_2GdF_5:Tb$* , Thuyết minh đề tài KH&CN cấp Bộ tài khóa 2022-2023, Mã số: ĐTCB.03/22/VNCHN, Viện Năng lượng nguyên tử Việt Nam (VINATOM).
- [17] Trương Quang Nghĩa, 2008, *Nhiệt phát quang và ứng dụng*, Giáo trình Đại học và Sau đại học, NXB Đại học Quốc gia TP. Hồ Chí Minh.

- [18] Trần Đình Hùng, 2020, Nghiên cứu đặc tính nhiệt phát quang của $K_2GdF_5:Tb$ trong đo liều bức xạ hạt nhân, *Luận văn thạc sĩ Vật lý*, Học viện KH&CN, VAST.
- [19] Claudio Furetta, 2003, *Handbook of Thermoluminescence*, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd, Singapore.
- [20] Châu Văn Tạo, 2004, *An toàn bức xạ iôn hóa*, NXB Đại học Quốc gia TP. Hồ Chí Minh.
- [21] Nguyễn Nhị Điền, 2015, *Các bài giảng về An toàn bức xạ: Tập 1 – An toàn bức xạ trong y tế*, NXB Đại học Quốc gia Hà Nội.
- [22] IEC 1066, 1991, *Thermoluminescence dosimetry systems for personal and environment monitoring*, IEC 1066:1991, IEC publication.
- [23] IEC 62387, 2012, *Passive integrating dosimetry systems for personal and environmental monitoring of photon and beta radiation*, IEC 62387:2012, IEC publication.
- [24] Eduardo G. Yuhikara, Stephen W. S. McKeever, 2011, *Optical Stimulated Luminescence, Fundamentals and applications*, Elsevier Science B.V, Oklahoma State University, USA, pp.1-14, 21-25, 115-116, 123-140, 146-150.
- [25] Nguyễn Trần Hà My, 2023, *Khảo sát tính ổn định của quy trình chế tạo $K_2GdF_5:Tb$ bằng nghiên cứu đáp ứng nhiệt phát quang của vật liệu với bức xạ hạt nhân*, Luận văn thạc sĩ Vật lý, Học viện KH&CN, VAST.

DANH MỤC CÔNG TRÌNH CỦA TÁC GIẢ

Phan Van Toan, Nguyen Van Hung, Le Viet Phong, Pham Van Dung, Pham Hung Thai, Doan Thi Ngoc No, **Dinh Thi Quynh Giang**, 2023, STUDYING A HOMOGENEITY FOR MANUFACTURED BATCHES OF THERMOLUMINESCENCE MATERIAL OF $K_2GdF_5:Tb$ FOR PHOTON AND NEUTRON RADIATION, *Tuyển tập Báo cáo Hội nghị Khoa học và Công nghệ hạt nhân toàn quốc lần thứ 15 (VINANST-15)*, ngày 9-11/8/2023 tại Nha Trang, Khánh Hòa, tr.220-224, NXB Khoa học và Kỹ thuật, Hà Nội.

PHỤ LỤC

PHỤ LỤC 1. MỘT SỐ CÔNG THỨC TÍNH TOÁN LIÊN QUAN

Phương pháp xác định nửa độ rộng khoảng tin cậy của giá trị trung bình:

Từ số liệu đo đạc, tính số đếm trung bình \bar{N} , độ lệch chuẩn SD và giá trị độ rộng một nửa của khoảng tin cậy l đối với giá trị trung bình bằng cách áp dụng công thức tính toán (1), (2) và (3) như sau:

- Công thức tính số đếm trung bình:
$$\bar{N} = \frac{1}{10} \sum_{i=1}^{10} Ni \quad (1)$$

- Công thức tính độ lệch chuẩn:
$$SD = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{10} (xi - \bar{x})^2}{n-1}} \quad (2)$$

- Công thức xác định giá trị độ rộng một nửa của khoảng tin cậy l cho giá trị trung bình $(\bar{x} - l, \bar{x} + l)$ với giá trị độ rộng một nửa của khoảng tin cậy được tính bởi công thức:

$$l = \frac{t_{\frac{\alpha}{2}} \cdot SD}{\sqrt{n}} \quad (3)$$

Trong đó, $t_{\frac{\alpha}{2}}$ là phân vị mức ý nghĩa $\alpha/2$ và được tra từ bảng phân bố student với bậc tự do $(n-1)$

Bảng 1.1 Giá trị tới hạn Student (hai phía), $t_{\alpha}(n_i)$

| n/ α | 0,005 | 0,01 | 0,015 | 0,02 | 0,025 | 0,03 | 0,04 | 0,05 | 0,1 |
|-----------------------------------|--------------|-------------|--------------|-------------|--------------|-------------|-------------|-------------|------------|
| 1 | 63,657 | 31,821 | 21,205 | 15,895 | 12,706 | 10,579 | 7,916 | 6,314 | 3,078 |
| 2 | 9,925 | 6,965 | 5,643 | 4,849 | 4,303 | 3,896 | 3,320 | 2,920 | 1,886 |
| 3 | 5,841 | 4,541 | 3,896 | 3,482 | 3,182 | 2,951 | 2,605 | 2,353 | 1,638 |
| 4 | 4,604 | 3,747 | 3,298 | 2,999 | 2,776 | 2,601 | 2,333 | 2,132 | 1,533 |
| 5 | 4,032 | 3,365 | 3,003 | 2,757 | 2,571 | 2,422 | 2,191 | 2,015 | 1,476 |
| 6 | 3,707 | 3,143 | 2,829 | 2,612 | 2,447 | 2,313 | 2,104 | 1,943 | 1,440 |
| 7 | 3,499 | 2,998 | 2,715 | 2,517 | 2,365 | 2,241 | 2,046 | 1,895 | 1,415 |
| 8 | 3,355 | 2,896 | 2,634 | 2,449 | 2,306 | 2,189 | 2,004 | 1,860 | 1,397 |
| 9 | 3,250 | 2,821 | 2,574 | 2,398 | 2,262 | 2,150 | 1,973 | 1,833 | 1,383 |
| 10 | 3,169 | 2,764 | 2,527 | 2,359 | 2,228 | 2,120 | 1,948 | 1,812 | 1,372 |
| 11 | 3,106 | 2,718 | 2,491 | 2,328 | 2,201 | 2,096 | 1,928 | 1,796 | 1,363 |
| 12 | 3,055 | 2,681 | 2,461 | 2,303 | 2,179 | 2,076 | 1,912 | 1,782 | 1,356 |
| 13 | 3,012 | 2,650 | 2,436 | 2,282 | 2,160 | 2,060 | 1,899 | 1,771 | 1,350 |
| 14 | 2,977 | 2,624 | 2,415 | 2,264 | 2,145 | 2,046 | 1,887 | 1,761 | 1,345 |
| 15 | 2,947 | 2,602 | 2,397 | 2,249 | 2,131 | 2,034 | 1,878 | 1,753 | 1,341 |
| 16 | 2,921 | 2,583 | 2,382 | 2,235 | 2,120 | 2,024 | 1,869 | 1,746 | 1,337 |

| | | | | | | | | | |
|----|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 17 | 2,898 | 2,567 | 2,368 | 2,224 | 2,110 | 2,015 | 1,862 | 1,740 | 1,333 |
| 18 | 2,878 | 2,552 | 2,356 | 2,214 | 2,101 | 2,007 | 1,855 | 1,734 | 1,330 |
| 19 | 2,861 | 2,539 | 2,346 | 2,205 | 2,093 | 2,000 | 1,850 | 1,729 | 1,328 |
| 20 | 2,845 | 2,528 | 2,336 | 2,197 | 2,086 | 1,994 | 1,844 | 1,725 | 1,325 |
| 21 | 2,831 | 2,518 | 2,328 | 2,189 | 2,080 | 1,988 | 1,840 | 1,721 | 1,323 |
| 22 | 2,819 | 2,508 | 2,320 | 2,183 | 2,074 | 1,983 | 1,835 | 1,717 | 1,321 |
| 23 | 2,807 | 2,500 | 2,313 | 2,177 | 2,069 | 1,978 | 1,832 | 1,714 | 1,319 |
| 24 | 2,797 | 2,492 | 2,307 | 2,172 | 2,064 | 1,974 | 1,828 | 1,711 | 1,318 |
| 25 | 2,787 | 2,485 | 2,301 | 2,167 | 2,060 | 1,970 | 1,825 | 1,708 | 1,316 |
| 26 | 2,779 | 2,479 | 2,296 | 2,162 | 2,056 | 1,967 | 1,822 | 1,706 | 1,315 |
| 27 | 2,771 | 2,473 | 2,291 | 2,158 | 2,052 | 1,963 | 1,819 | 1,703 | 1,314 |
| 28 | 2,763 | 2,467 | 2,286 | 2,154 | 2,048 | 1,960 | 1,817 | 1,701 | 1,313 |
| 29 | 2,756 | 2,462 | 2,282 | 2,150 | 2,045 | 1,957 | 1,814 | 1,699 | 1,311 |
| 30 | 2,750 | 2,457 | 2,278 | 2,147 | 2,042 | 1,955 | 1,812 | 1,697 | 1,310 |

PHỤ LỤC 2. KẾT QUẢ ĐO ĐỘ LẶP LẠI

Bảng 2.1. Kết quả đo lần 1 và lần 2

| Stt | Lần 1 | | Lần 2 | |
|----------------------------|---------|-----------------|---------|-----------------|
| | Tên mẫu | Số đếm (counts) | Tên mẫu | Số đếm (counts) |
| 1 | MC-01 | 10.469 | MC-11 | 11.002 |
| 2 | MC-02 | 11.400 | MC-12 | 13.087 |
| 3 | MC-03 | 10.799 | MC-13 | 12.578 |
| 4 | MC-04 | 11.615 | MC-14 | 12.068 |
| 5 | MC-05 | 11.592 | MC-15 | 12.570 |
| 6 | MC-06 | 12.876 | MC-16 | 13.908 |
| 7 | MC-07 | 10.523 | MC-17 | 12.067 |
| 8 | MC-08 | 10.985 | MC-18 | 13.043 |
| 9 | MC-09 | 11.829 | MC-19 | 12.066 |
| 10 | MC-10 | 11.216 | MC-20 | 12.218 |
| Trung bình (counts) | | 11.330 | | 12.461 |
| SD | | 678 | | 742 |
| CV (%) | | 5,99 | | 5,95 |
| Độ lặp lại | | 0,074 | | 0,074 |

Bảng 2.2. Kết quả đo lần 3 và 4

| Stt | Lần 3 | | Lần 4 | |
|----------------------------|---------|-----------------|---------|-----------------|
| | Tên mẫu | Số đếm (counts) | Tên mẫu | Số đếm (counts) |
| 1 | MC-21 | 10.118 | MC-31 | 12.186 |
| 2 | MC-22 | 9.627 | MC-32 | 12.090 |
| 3 | MC-23 | 9.925 | MC-33 | 12.098 |
| 4 | MC-24 | 10.217 | MC-34 | 10.738 |
| 5 | MC-25 | 12.007 | MC-35 | 12.570 |
| 6 | MC-26 | 9.980 | MC-36 | 10.870 |
| 7 | MC-27 | 10.290 | MC-37 | 11.526 |
| 8 | MC-28 | 10.375 | MC-38 | 11.095 |
| 9 | MC-29 | 10.572 | MC-39 | 10.572 |
| 10 | MC-30 | 10.125 | MC-40 | 11.056 |
| Trung bình (counts) | | 10.324 | | 11.480 |
| SD | | 613 | | 672 |
| CV (%) | | 5,94 | | 5,85 |
| Độ lặp lại | | 0,073 | | 0,072 |

Bảng 2.3. Kết quả đo lần 5 và 6

| Stt | Lần 5 | | Lần 6 | |
|----------------------------|---------|-----------------|---------|-----------------|
| | Tên mẫu | Số đếm (counts) | Tên mẫu | Số đếm (counts) |
| 1 | MC-41 | 11.034 | MC-51 | 12.003 |
| 2 | MC-42 | 13.087 | MC-52 | 12.873 |
| 3 | MC-43 | 13.002 | MC-53 | 12.099 |
| 4 | MC-44 | 12.796 | MC-54 | 13.045 |
| 5 | MC-45 | 13.026 | MC-55 | 13.479 |
| 6 | MC-46 | 12.908 | MC-56 | 12.097 |
| 7 | MC-47 | 12.306 | MC-57 | 12.450 |
| 8 | MC-48 | 11.780 | MC-58 | 11.091 |
| 9 | MC-49 | 13.849 | MC-59 | 13.405 |
| 10 | MC - 50 | 12.676 | MC- 60 | 12.258 |
| Trung bình (counts) | | 12.646 | | 12.480 |
| SD | | 740 | | 695 |
| CV (%) | | 5,85 | | 5,57 |
| Độ lặp lại | | 0,072 | | 0,069 |

Bảng 2.4. Kết quả đo lần 7 và 8

| Stt | Lần 7 | | Lần 8 | |
|----------------------------|---------|-----------------|---------|-----------------|
| | Tên mẫu | Số đếm (counts) | Tên mẫu | Số đếm (counts) |
| 1 | MC-61 | 12.574 | MC-71 | 12.690 |
| 2 | MC-62 | 12.067 | MC-72 | 11.250 |
| 3 | MC-63 | 14.009 | MC-73 | 12.058 |
| 4 | MC-64 | 11.532 | MC-74 | 13.008 |
| 5 | MC-65 | 12.089 | MC-75 | 14.057 |
| 6 | MC-66 | 11.897 | MC-76 | 13.420 |
| 7 | MC-67 | 12.709 | MC-77 | 13.250 |
| 8 | MC-68 | 11.976 | MC-78 | 12.690 |
| 9 | MC-69 | 13.057 | MC-79 | 12.280 |
| 10 | MC - 70 | 12.003 | MC- 80 | 12.876 |
| Trung bình (counts) | | 12.391 | | 12.758 |
| SD | | 685 | | 738 |
| CV (%) | | 5,53 | | 5,78 |
| Độ lặp lại | | 0,068 | | 0,071 |

Bảng 2.5. Kết quả đo lần 9 và 10

| Stt | Lần 9 | | Lần 10 | |
|----------------------------|---------|--------------------|---------|--------------------|
| | Tên mẫu | Số đếm (counts) | Tên mẫu | Số đếm (counts) |
| 1 | MC-81 | 11.986 | MC-91 | 10.508 |
| 2 | MC-82 | 12.192 | MC-92 | 12.602 |
| 3 | MC-83 | 13.379 | MC-93 | 11.767 |
| 4 | MC-84 | 10.985 | MC-94 | 11.027 |
| 5 | MC-85 | 12.705 | MC-95 | 12.303 |
| 6 | MC-86 | 11.092 | MC-96 | 12.359 |
| 7 | MC-87 | 13.016 | MC-97 | 13.004 |
| 8 | MC-88 | 11.529 | MC-98 | 12.108 |
| 9 | MC-89 | 12.076 | MC-99 | 11.367 |
| 10 | MC-90 | 12.057 | MC-100 | 12.005 |
| Trung bình (counts) | | 12.102 | | 11.905 |
| SD | | 738 | | 717 |
| CV (%) | | 6,10 | | 6,02 |
| Độ lặp lại | | 0,075 | | 0,074 |

PHỤ LỤC 3. SỐ ĐO SỰ SUY GIẢM TÍN HIỆU TL THEO THỜI GIAN CỦA CÁC MẪU

Các mẫu vật liệu $K_2GdF_5:Tb$ có cùng khối lượng 20 mg và được chiếu bức xạ neutron nhiệt đối với nguồn Am-Be với cùng liều chiếu 3 mSv.

Bảng 3.1. Số liệu đo khảo sát fading ở các thời gian khác nhau

| Stt | Tên mẫu khảo sát | Số đếm N Sau 1 ngày | Số đếm N Sau 7 ngày | Số đếm N Sau 14 ngày | Số đếm N Sau 21 ngày | Số đếm N Sau 30 ngày | Số đếm N Sau 60 ngày | Số đếm N Sau 90 ngày |
|-----------------------------------|------------------|---------------------|---------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| 1 | MC-01 | 4.432 | 3.746 | 4.395 | 1.559 | 3.542 | 3.058 | 1.058 |
| 2 | MC-02 | 3.718 | 3.870 | 4.169 | 2.838 | 3.838 | 3.571 | 3.571 |
| 3 | MC-03 | 4.261 | 3.880 | 1.317 | 3.124 | 3.100 | 3.579 | 5.179 |
| 4 | MC-04 | 4.341 | 3.619 | 3.689 | 5.668 | 3.868 | 3.210 | 2.210 |
| 5 | MC-05 | 3.958 | 4.058 | 5.194 | 1.748 | 3.048 | 3.336 | 5.236 |
| 6 | MC-06 | 4.101 | 4.379 | 3.744 | 4.971 | 4.171 | 4.515 | 4.615 |
| 7 | MC-07 | 3.718 | 3.933 | 4.605 | 4.906 | 4.906 | 3.707 | 1.707 |
| 8 | MC-08 | 4.261 | 4.028 | 3.159 | 3.124 | 3.424 | 4.934 | 4.934 |
| 9 | MC-09 | 4.341 | 3.852 | 2.155 | 5.668 | 3.668 | 2.930 | 2.930 |
| 10 | MC-10 | 3.958 | 4.074 | 5.218 | 3.237 | 3.237 | 3.900 | 5.267 |
| Số đếm trung bình (counts) | | 4.109 | 3.944 | 3764 | 3.684 | 3.680 | 3.674 | 3.671 |
| Độ lệch chuẩn SD (counts) | | 261 | 208 | 1264 | 1.521 | 560 | 635 | 1.603 |
| CV (%) | | 6,34 | 5,27 | 33,58 | 41,29 | 15,21 | 17,29 | 43,68 |