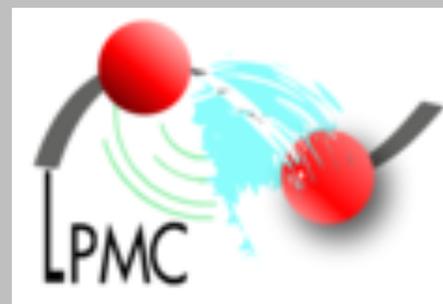


Propriétés de détection en mode passif de la fibre dopée Ge. Application à la dosimétrie clinique et aux milieux radiatifs sévères

M. Benabdesselam¹, F. Mady¹, S. Girard², J. B. Duchez¹, Y. Mebrouk¹

¹ Laboratoire Physique de la Matière Condensée, UMR 7336, Nice

² Laboratoire Hubert Curien, UMR 5516, Saint Etienne

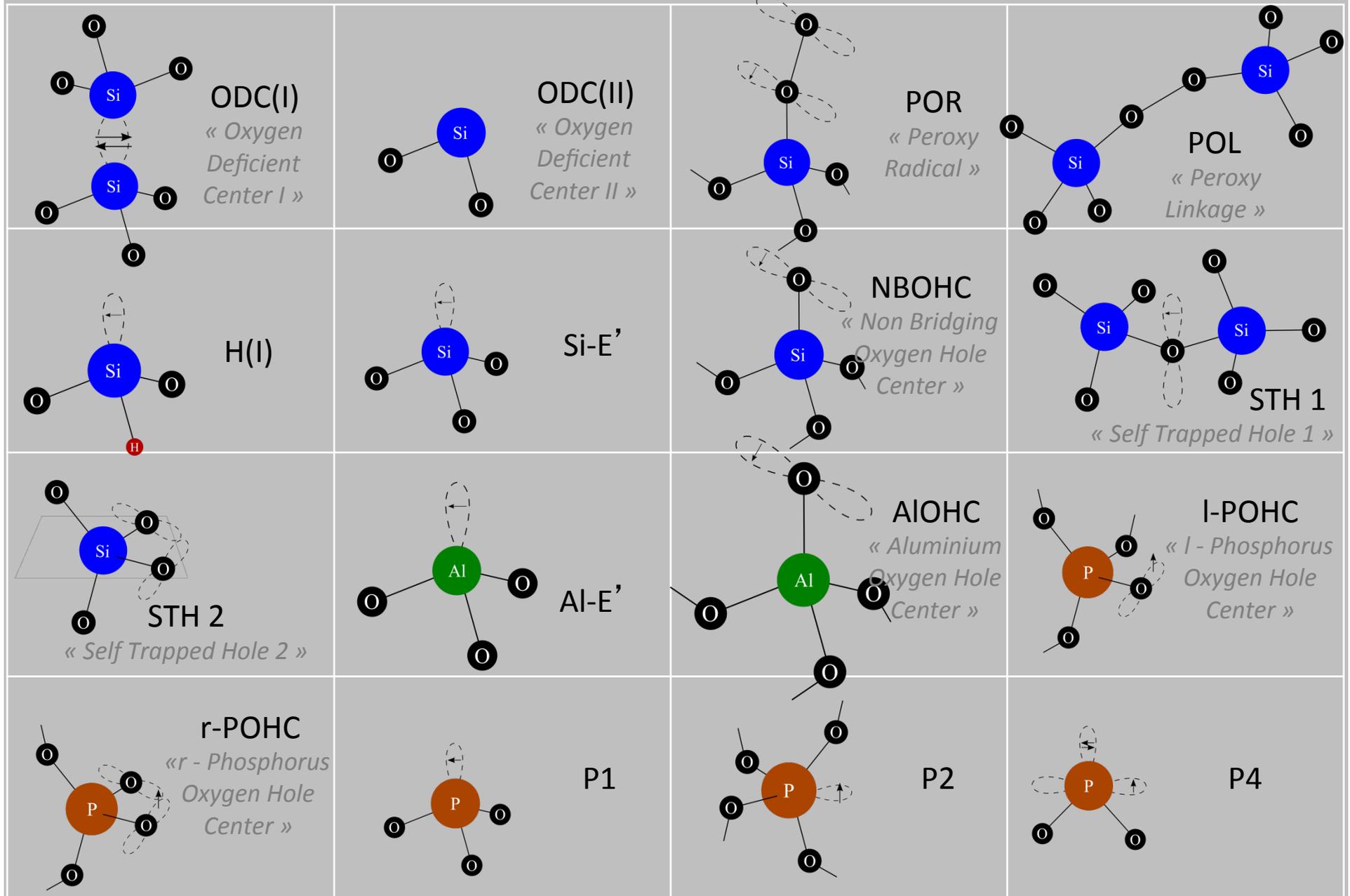


Plan

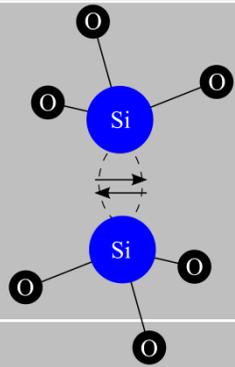
- Rappels sur les défauts silice
- Technique utilisée
- Performances dosimétriques de la fibre: Ge
- Tenue de la fibre: Ge sous différents rayonnements
- Conclusions

Les défauts dans la silice

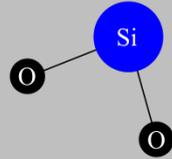
Les défauts dans les fibres en silice



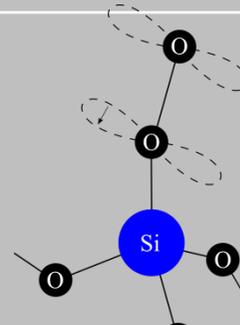
Les défauts intrinsèques



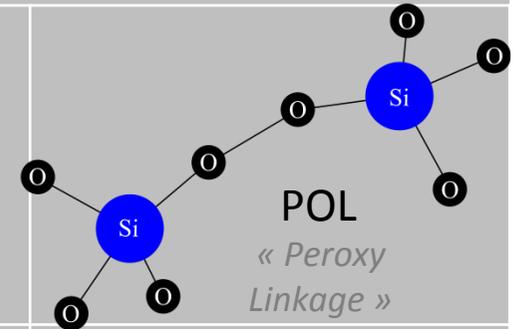
ODC(I)
« Oxygen Deficient Center I »



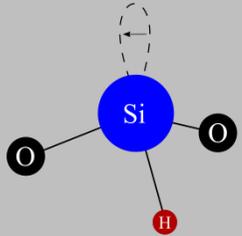
ODC(II)
« Oxygen Deficient Center II »



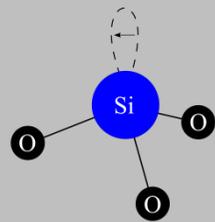
POR
« Peroxy Radical »



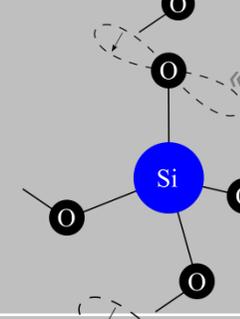
POL
« Peroxy Linkage »



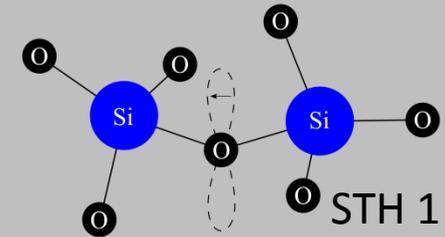
H(I)



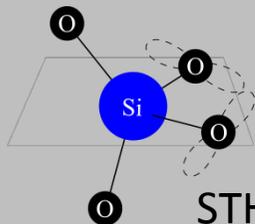
Si-E'



NBOHC
« Non Bridging Oxygen Hole Center »

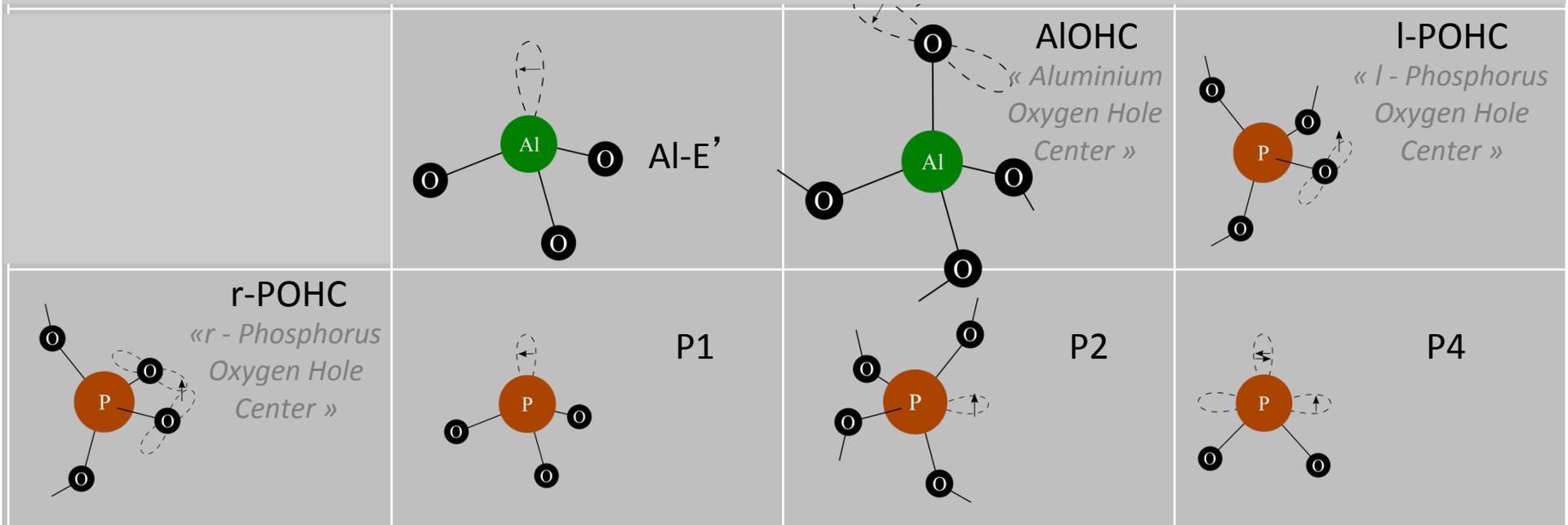


STH 1
« Self Trapped Hole 1 »

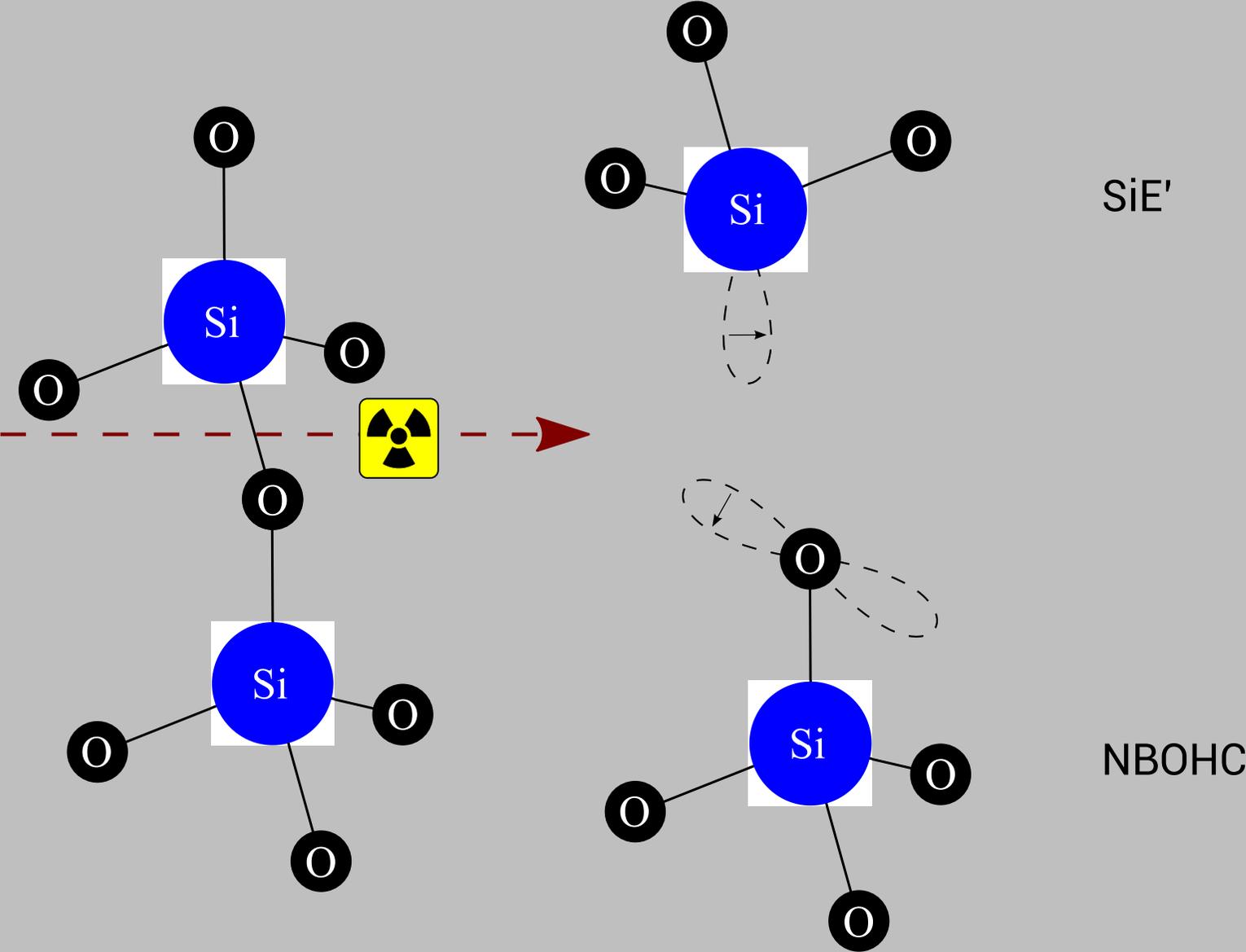


STH 2
« Self Trapped Hole 2 »

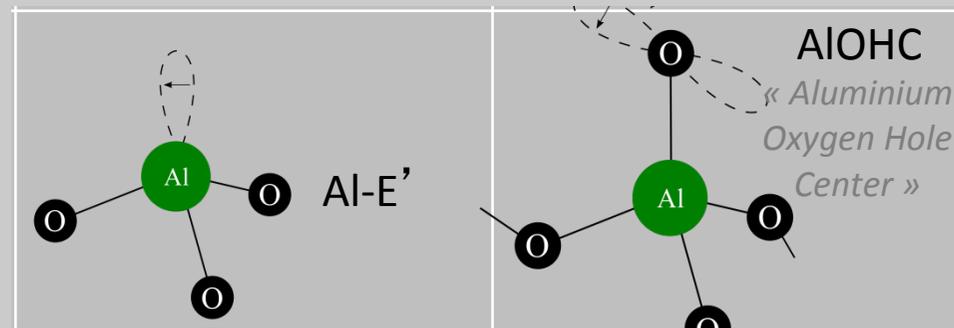
Les défauts extrinsèques



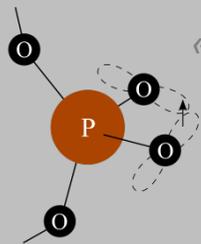
Les défauts induits par irradiation



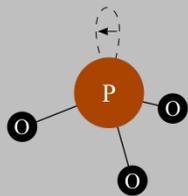
Les défauts induits dans aluminosilicates



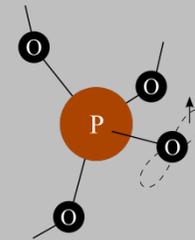
Les défauts induits dans phosphosilicates



r-POHC
« r - Phosphorus
Oxygen Hole
Center »

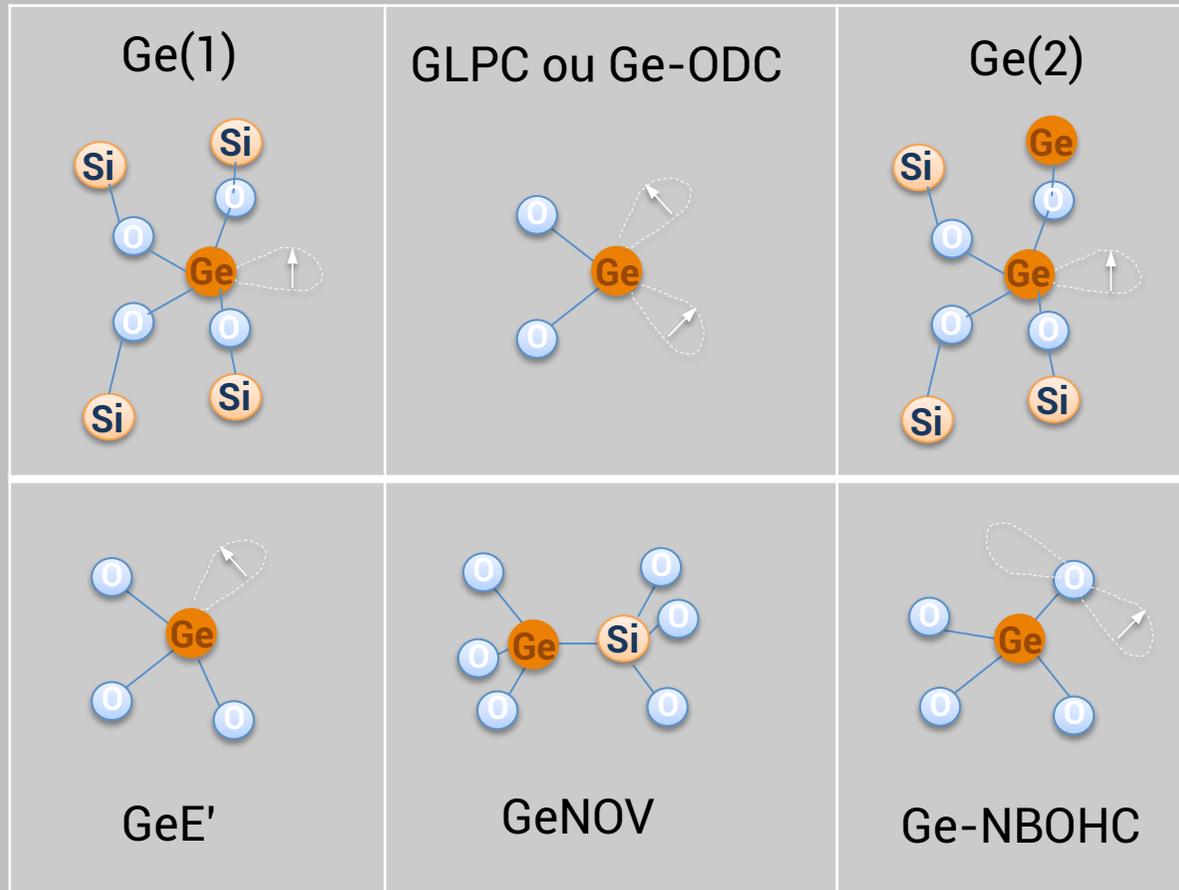


P1



I-POHC
« I - Phosphorus
Oxygen Hole
Center »

Cas des fibres en silice dopées Ge



Technique utilisée

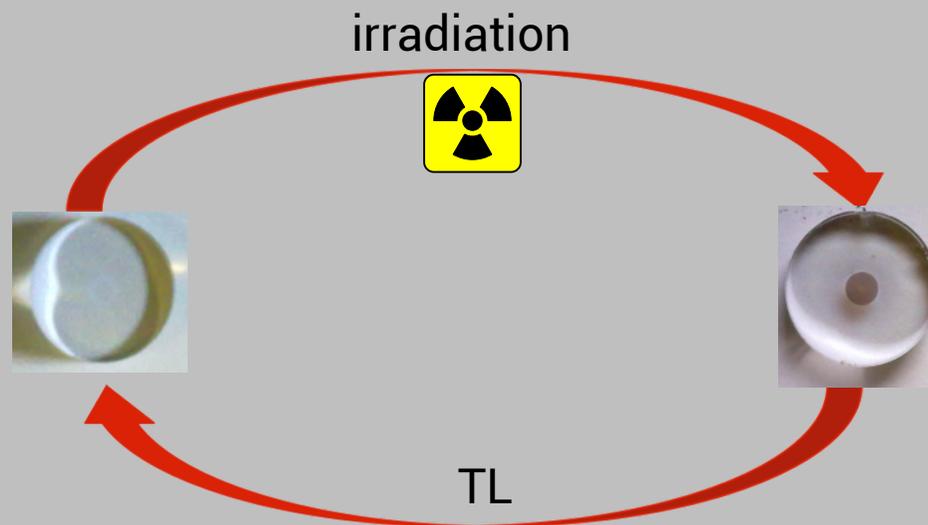
Concept de défaut ponctuel retenu  une des techniques: la TL

En complément d'autres techniques

Technique utilisée

Concept de défaut ponctuel retenu \longrightarrow une des techniques: la TL

TL = relaxation des mécanismes activés par l'irradiation



Détecteur en mode TL (dosimètre TLD)

Déterminer la dose absorbée dans les tissus

- *En dosimétrie médicale:*

- proton-thérapie, curiethérapie, radio-chirurgie, mammographie,..
- en routine en radiothérapie
- en contrôle qualité externe des accélérateurs

Implémenté comme référence par ESTRO

- *En dosimétrie UV :*

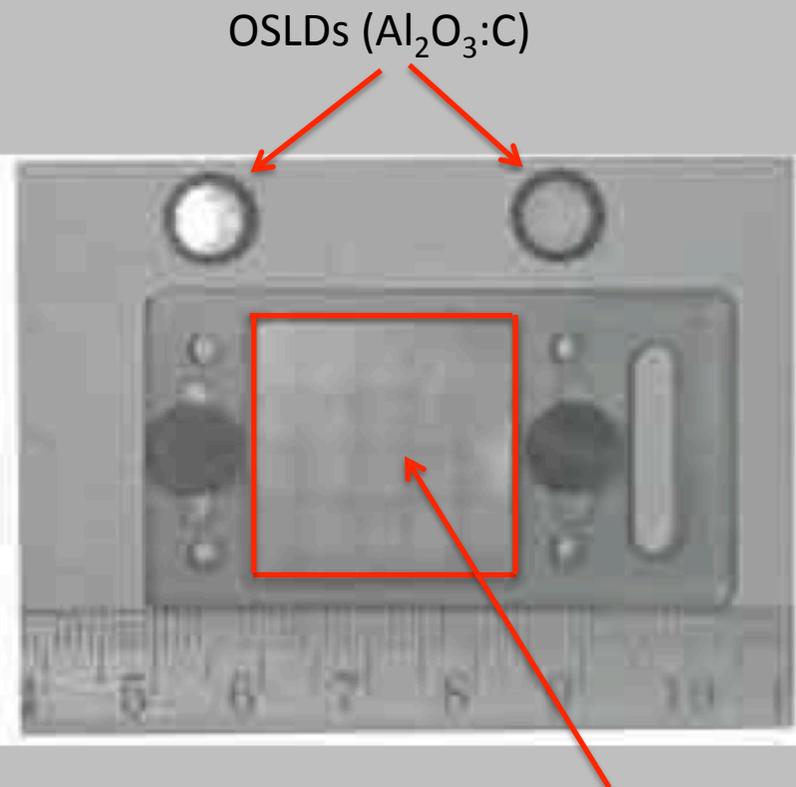
évaluation de l'exposition intégrée à la gamme UVB

Détecteur en mode TL (dosimètre)

- *En environnement spatial*
 - programmes Mir, Apollo, Skylab
 - ISS et navettes spatiales



Dosimètre d'ambiance



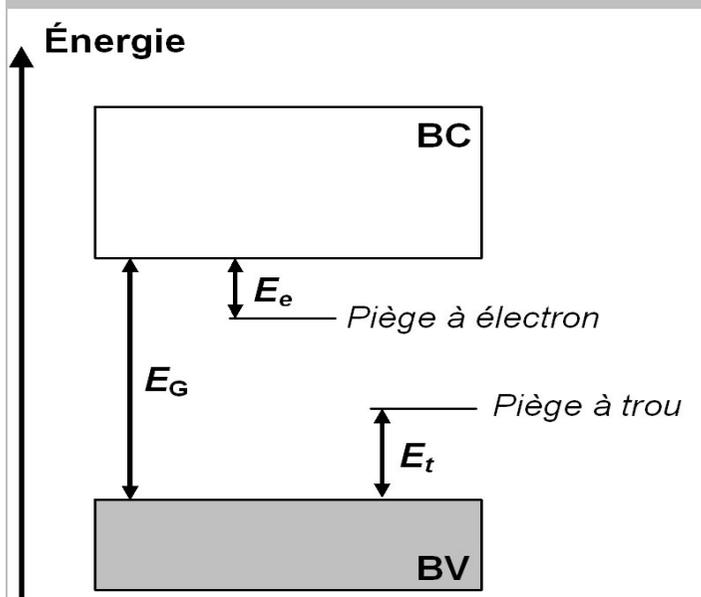
Dosimètre personnel OSLDs (Al₂O₃:C)
réseau de TLDs (LiF)

Le processus TL

Une technique bien connue...

- Dosimétrie des rayonnements ionisants
- Datation archéologique

Le modèle standard



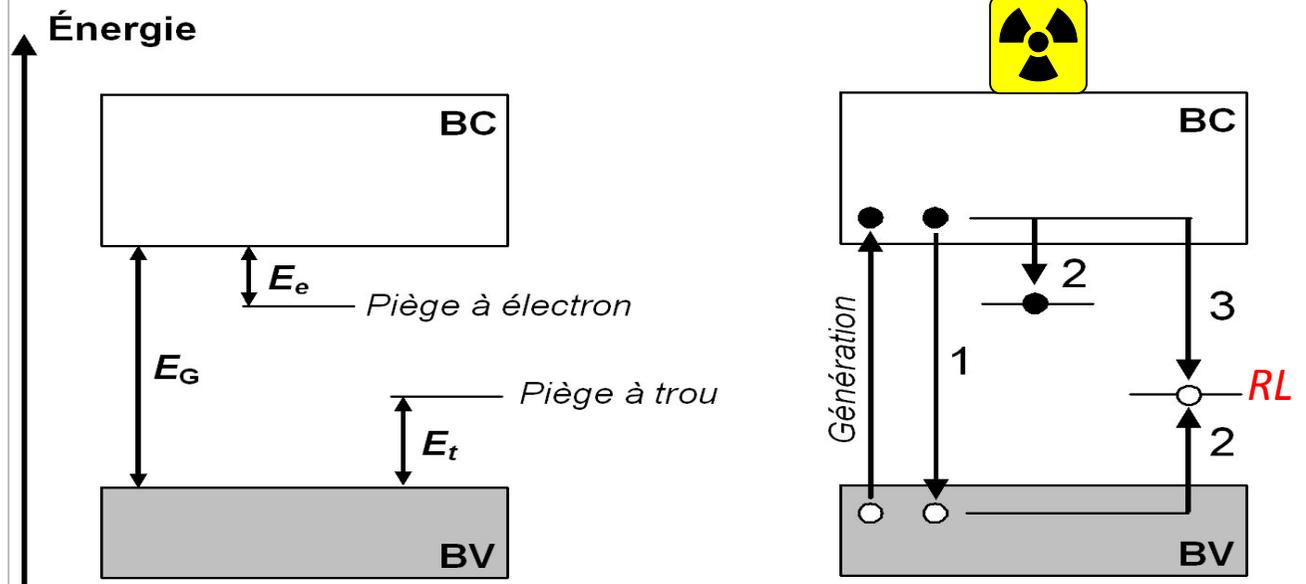
Matériau à large gap
Présence de « pièges »

Le processus TL

Une technique bien connue...

- Dosimétrie des rayonnements ionisants
- Datation archéologique

Le modèle standard



Matériau à large gap
Présence de « pièges »

Irrad. remplit les « pièges »

1 – recombinaison directe

2 – piégeage h^+ et e^-

3 – recombinaison indirecte → RL

Le processus TL

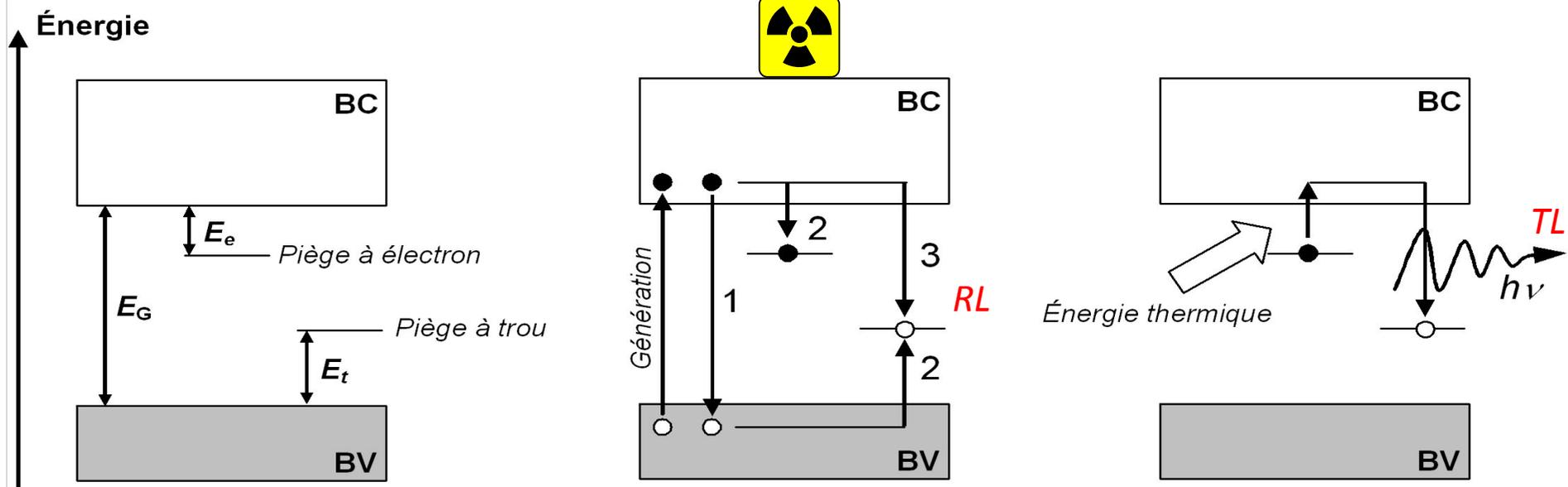
Une technique bien connue...

- Dosimétrie des rayonnements ionisants
- Datation archéologique

Le modèle standard

Irradiation

Lecture Chauffage linéaire



Matériau à large gap
Présence de « pièges »

Irrad. remplit les « pièges »

- 1 – recombinaison directe
- 2 – piégeage h^+ et e^-
- 3 – recombinaison indirecte

libération des e^-/h^+
recombinaisons radiatives

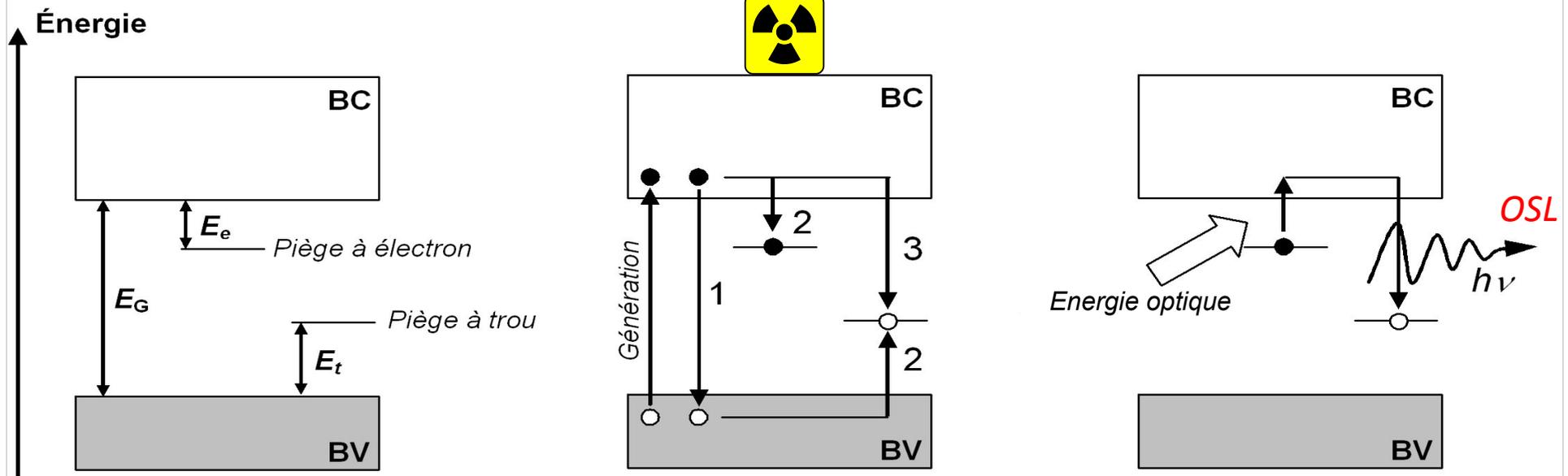
→ TL

Le processus OSL

Le modèle standard

Irradiation

Simulation optique (laser)



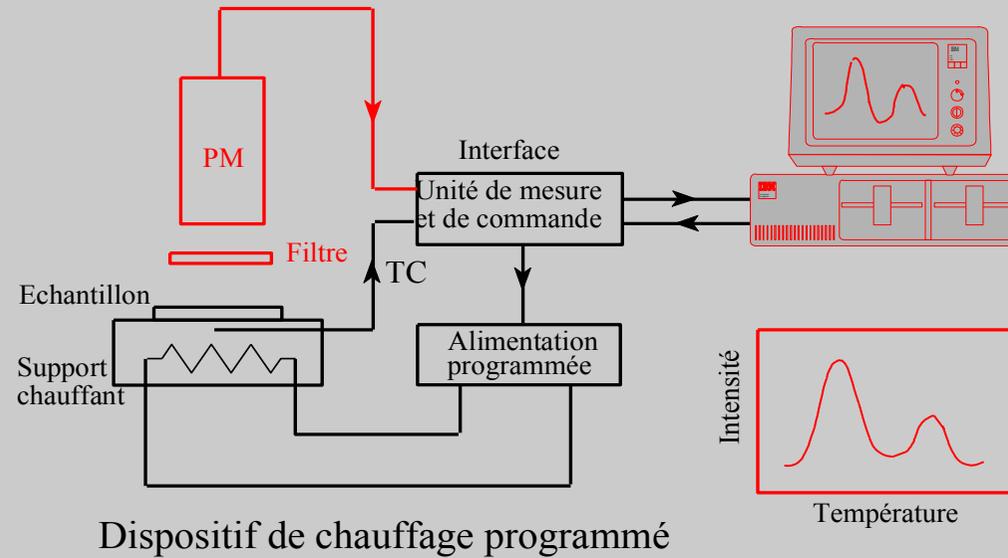
Matériau à large gap
Présence de « pièges »

Irrad. remplit les « pièges »
1 - recombinaison directe
2 - piégeage h^+ et e^-
3 - recombinaison indirecte

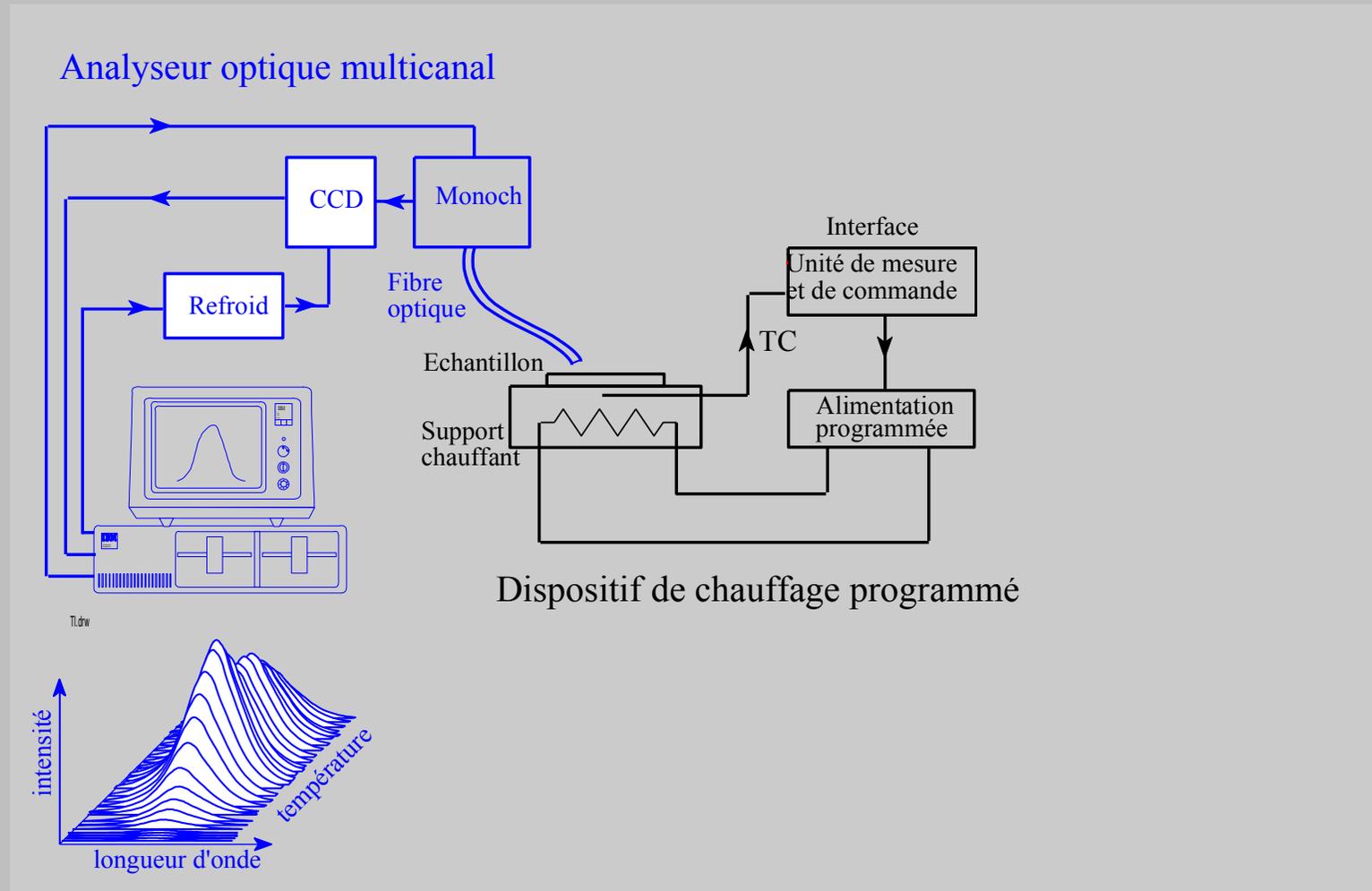
Libération des e^-/h^+
Recombinaisons radiatives
→ OSL

Dispositifs de lecture TL

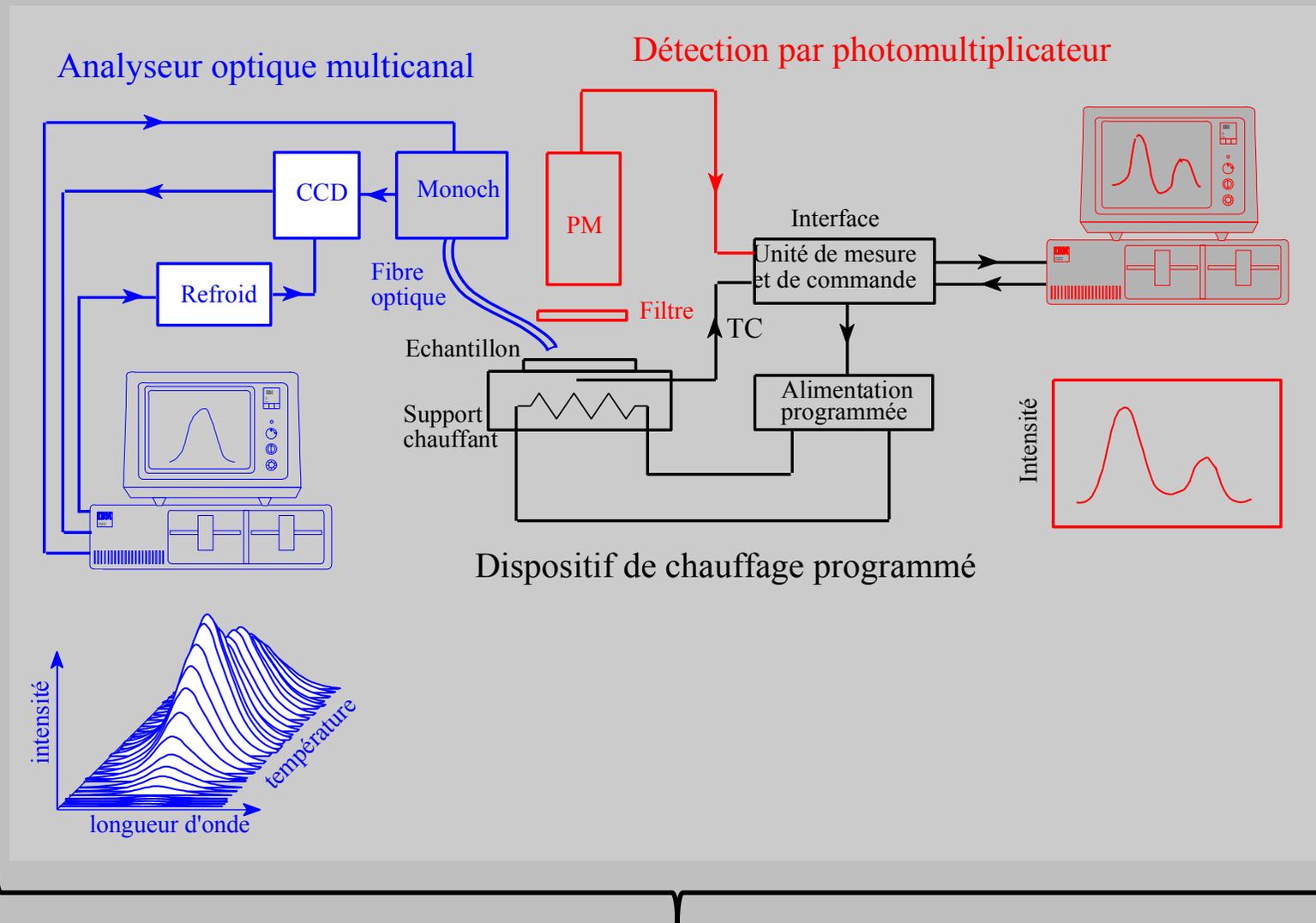
Détection par photomultiplicateur



Dispositifs de lecture TL résolue en λ



Dispositifs de lecture TL résolue en λ



TL: informations sur les centres luminescents et non luminescents

la fibre: Ge en dosimétrie ?

Étude par TL défauts fibres canoniques irradiées

Le signal TL (ou OSL)

L'intensité signal TL



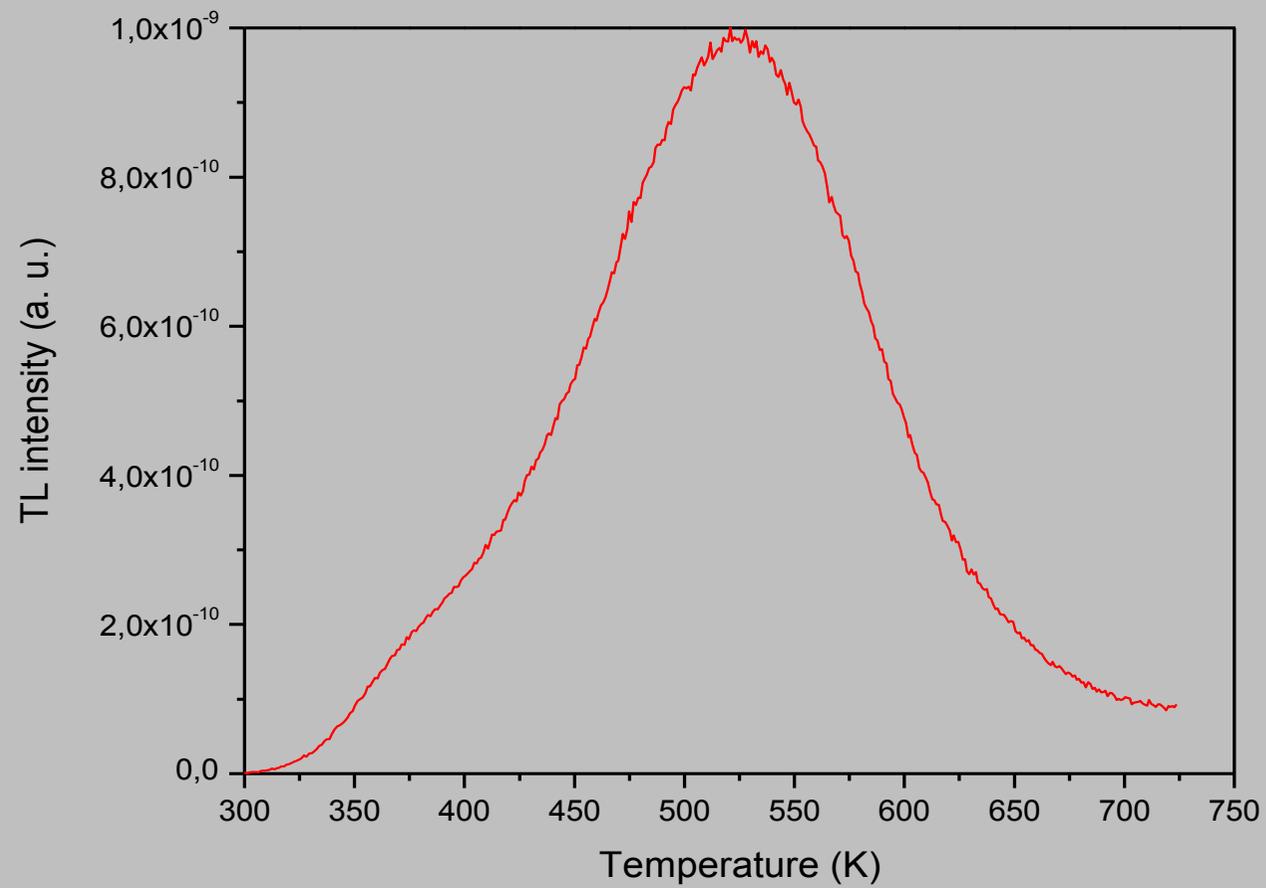
énergie absorbée dans le TLD

L'énergie absorbée



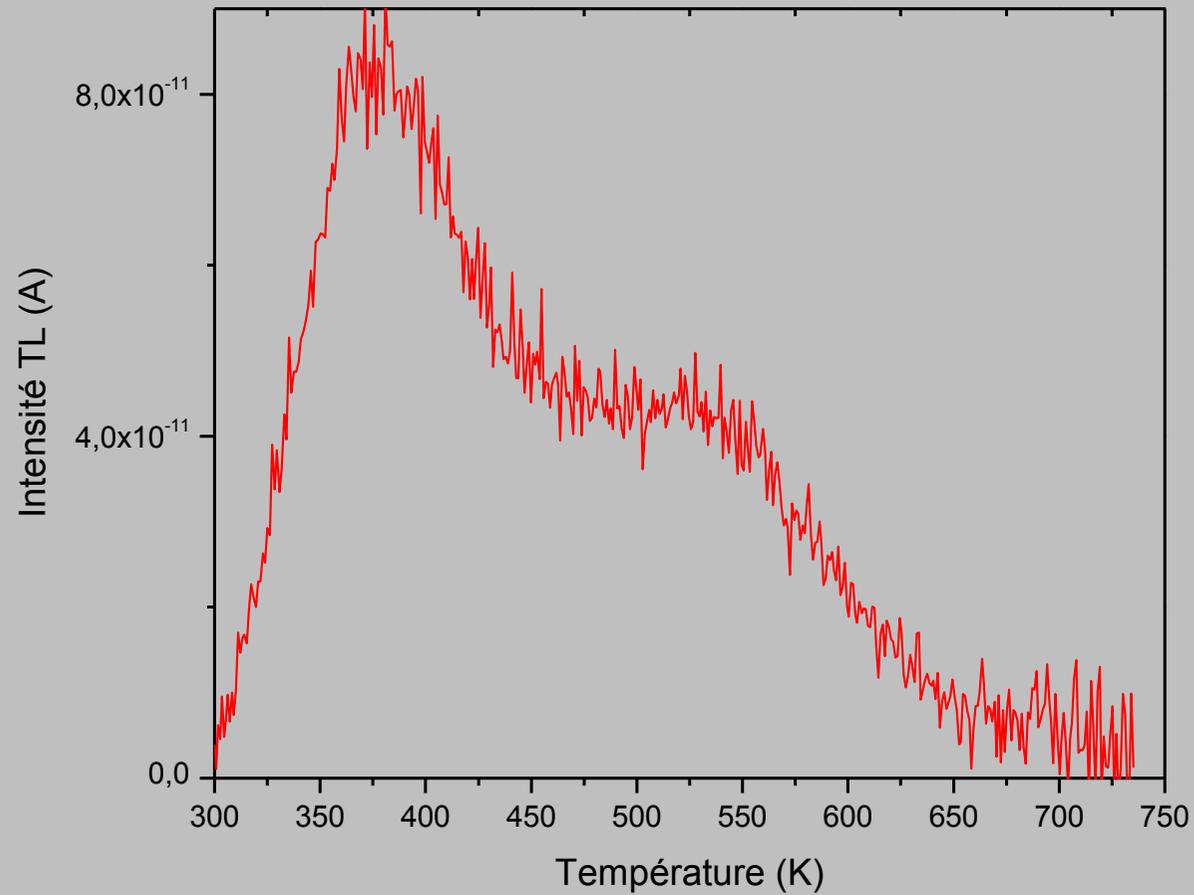
dose reçue par le TLD

TL de quelques fibres canoniques



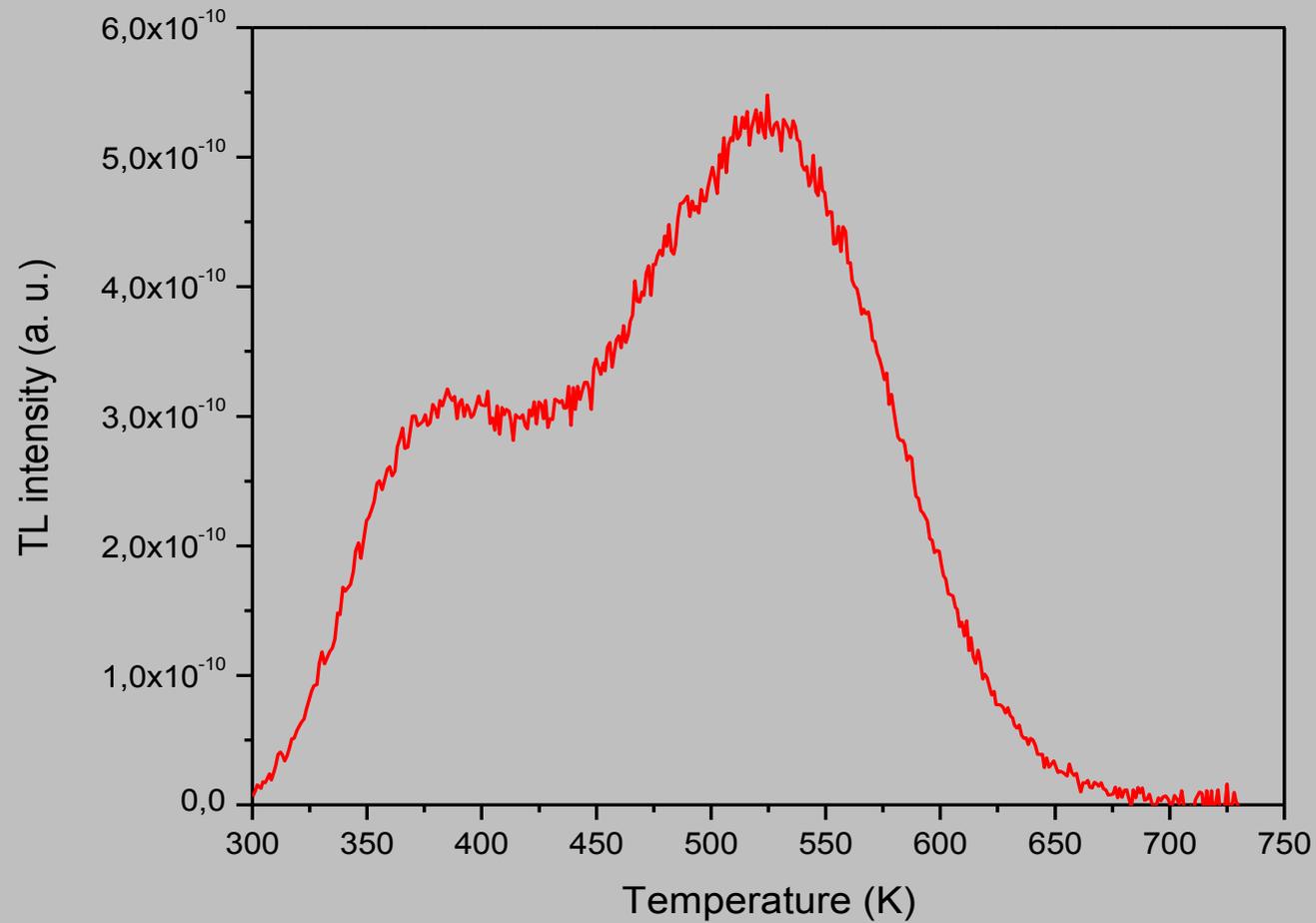
fibre silice pure

TL de quelques fibres canoniques



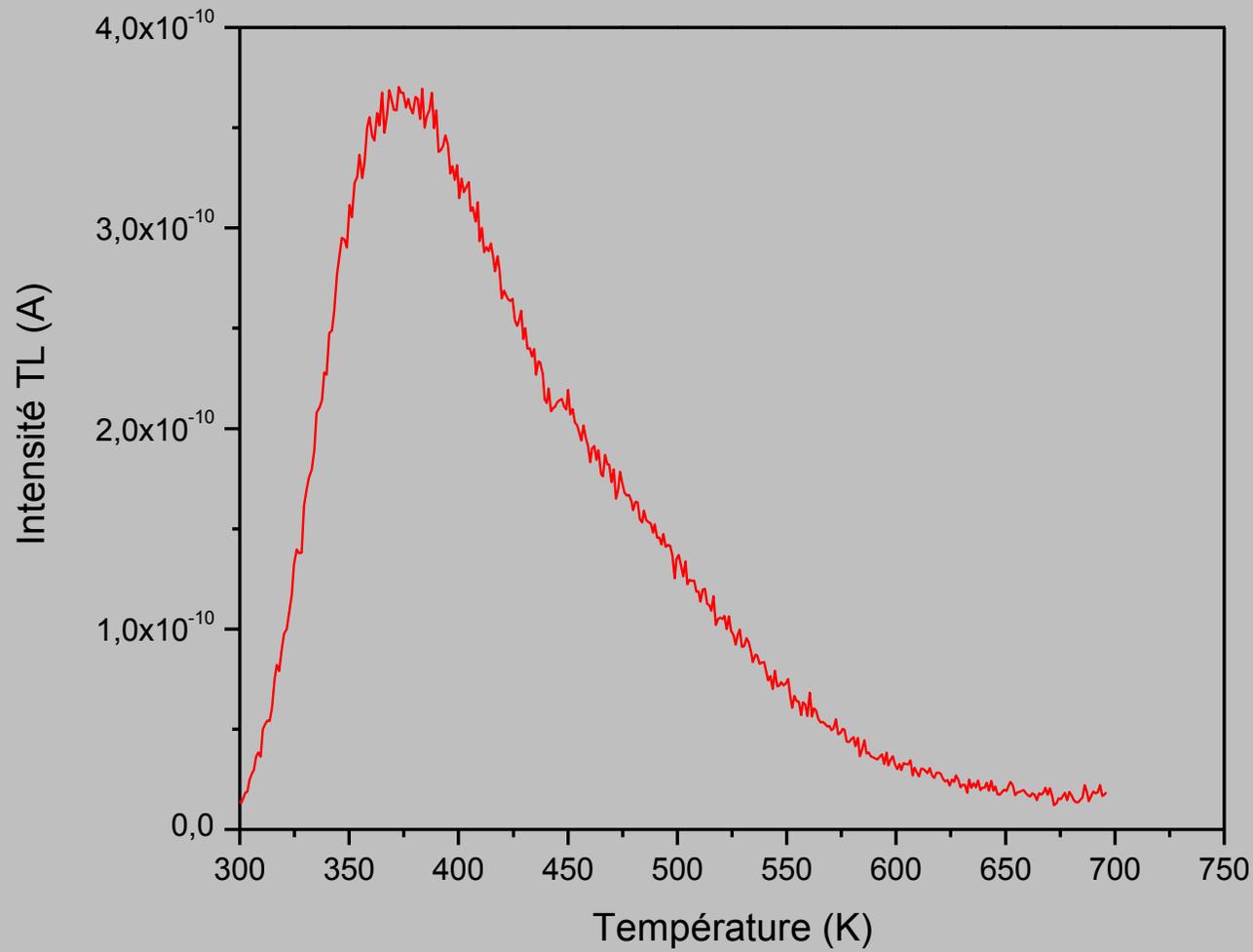
fibre: F

TL de quelques fibres canoniques



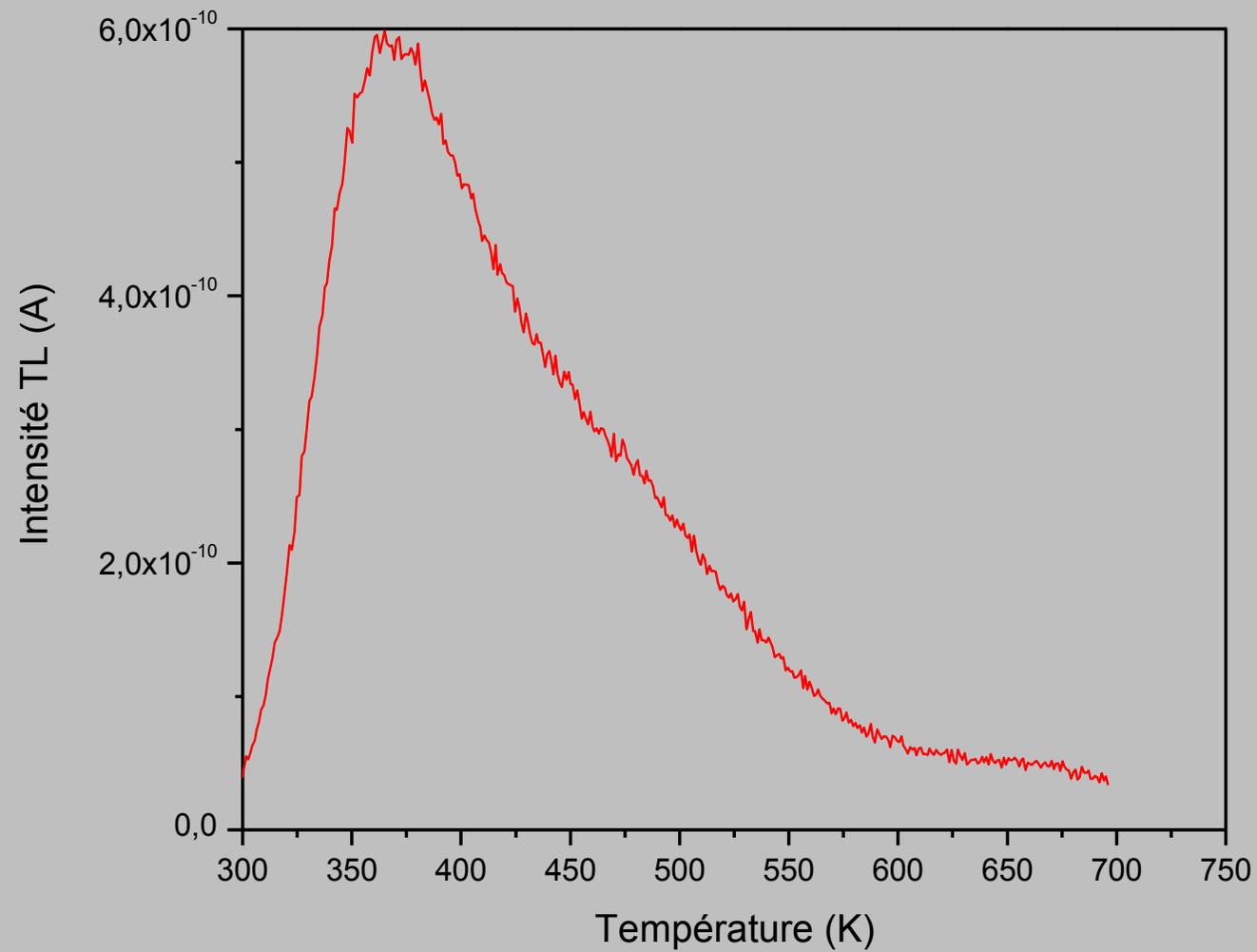
fibre: P

TL de quelques fibres canoniques



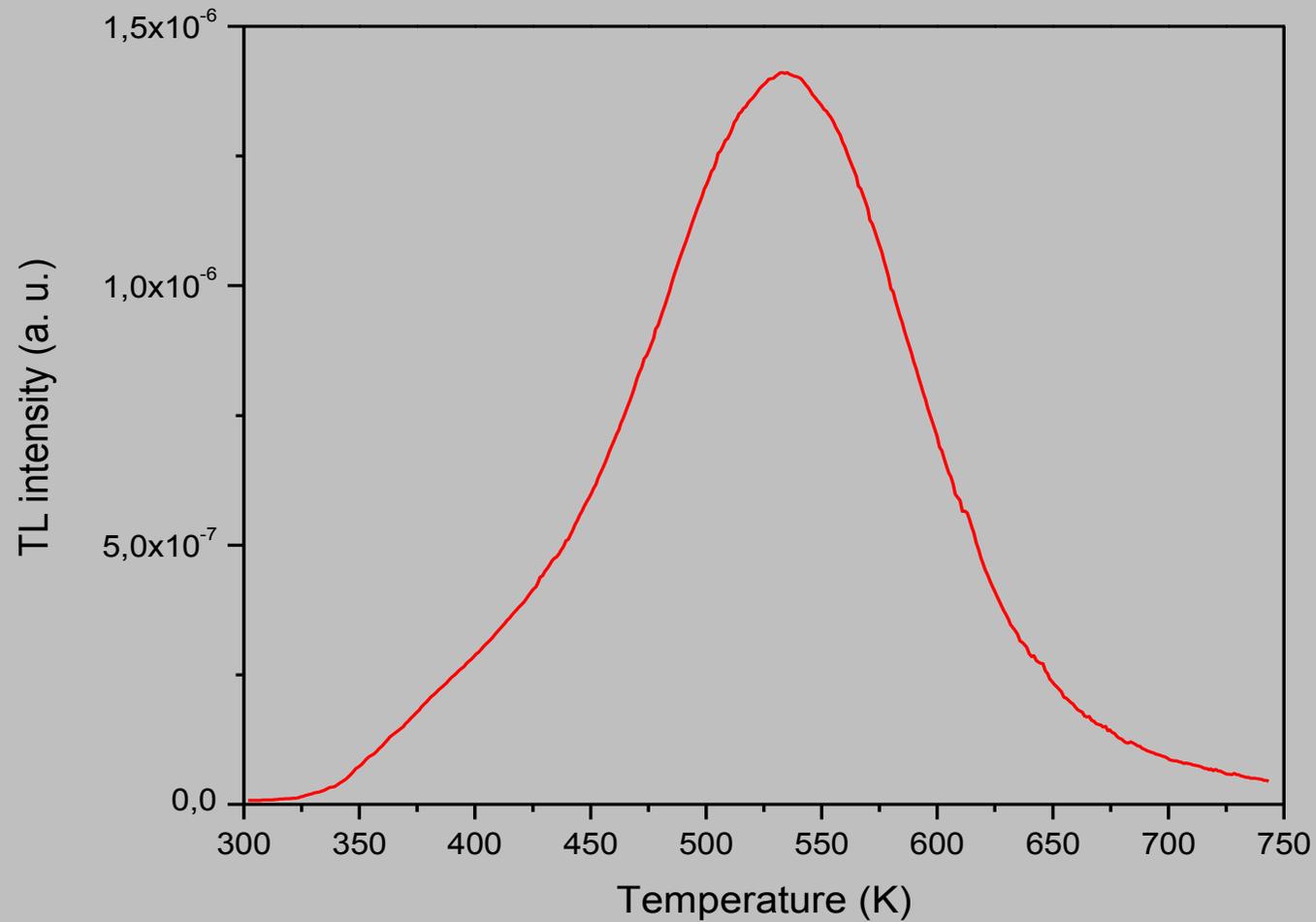
fibre monomode

TL de quelques fibres canoniques



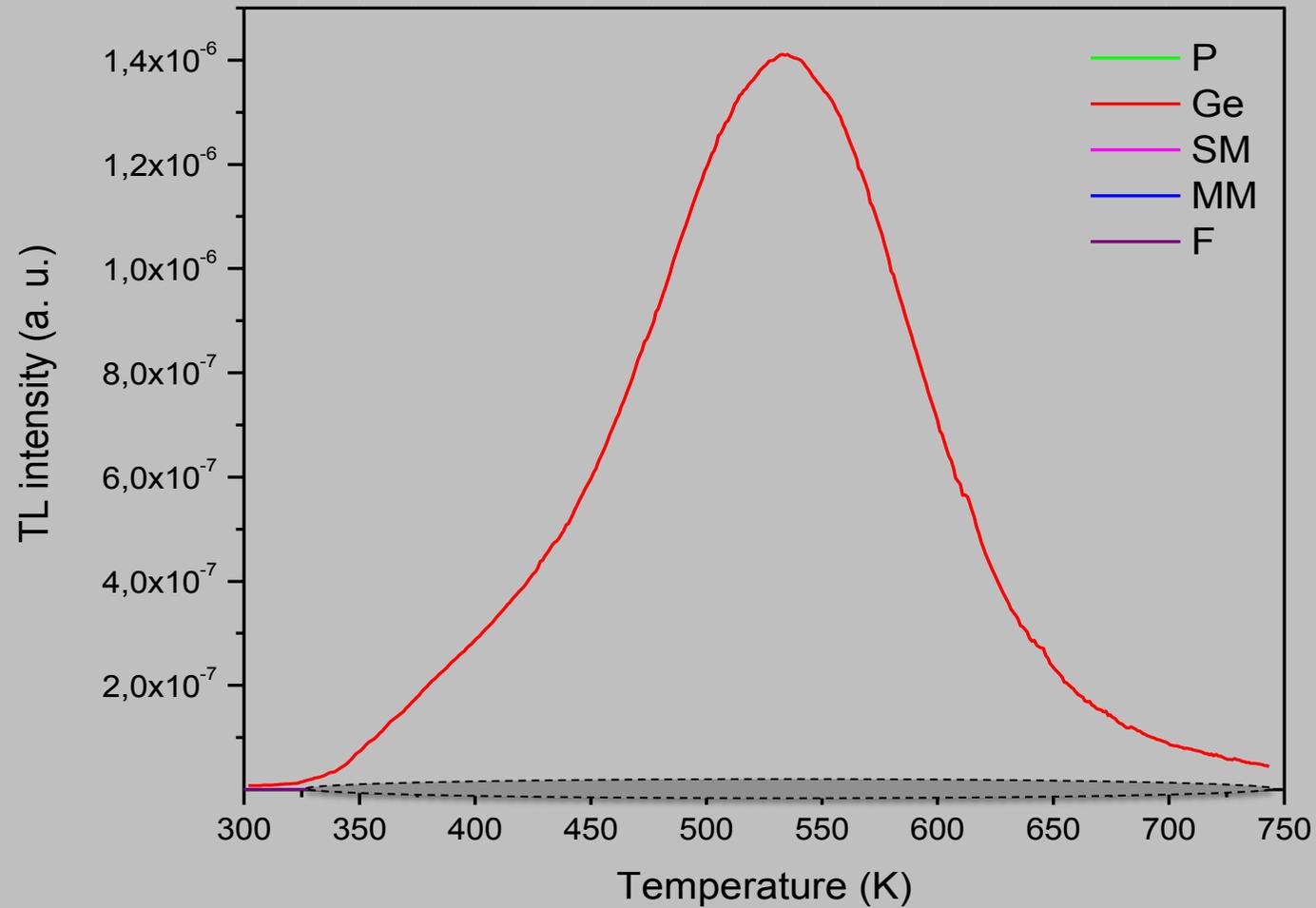
fibre multimode

TL de quelques fibres canoniques



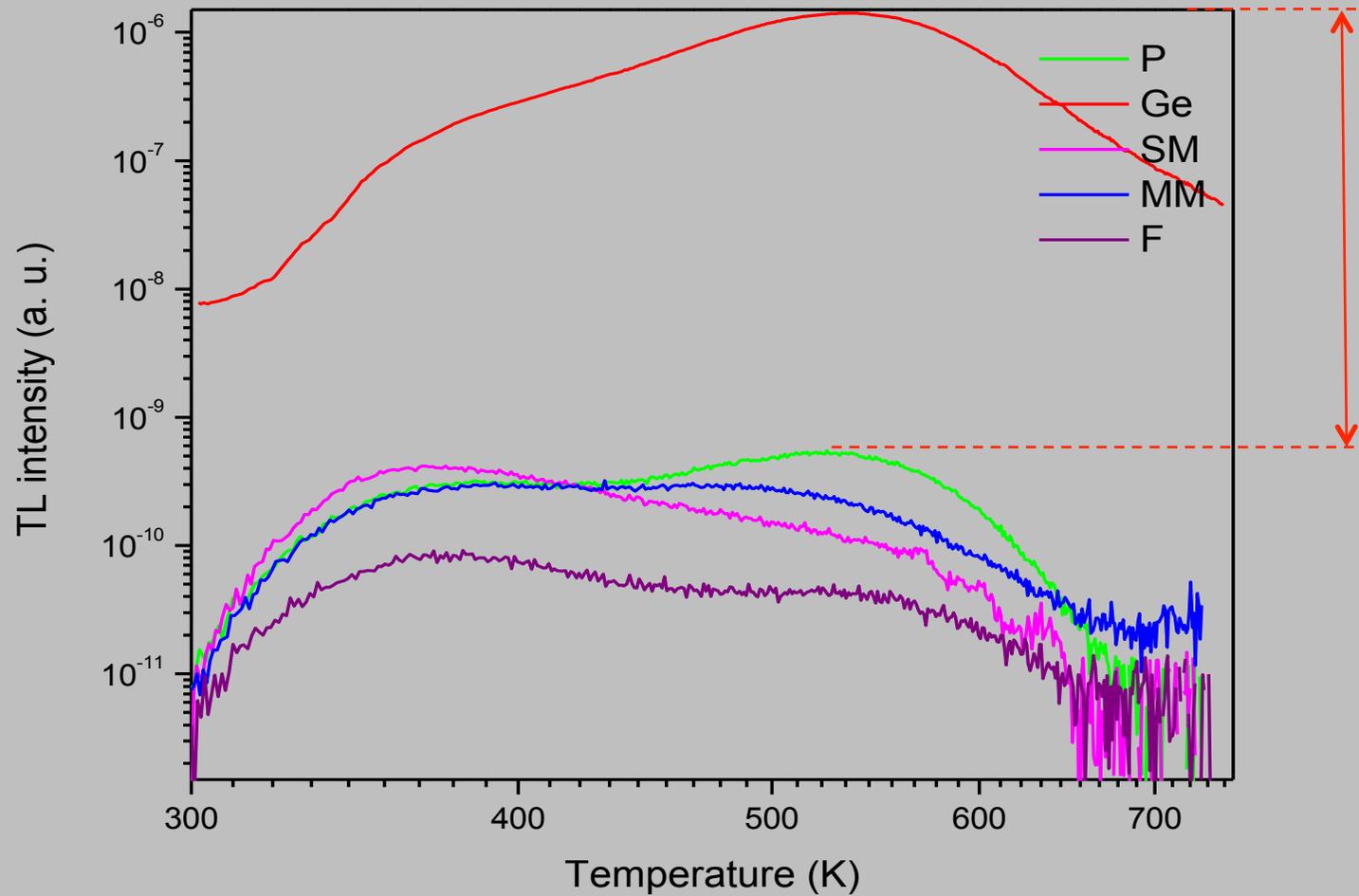
fibres: Ge

TL de quelques fibres canoniques



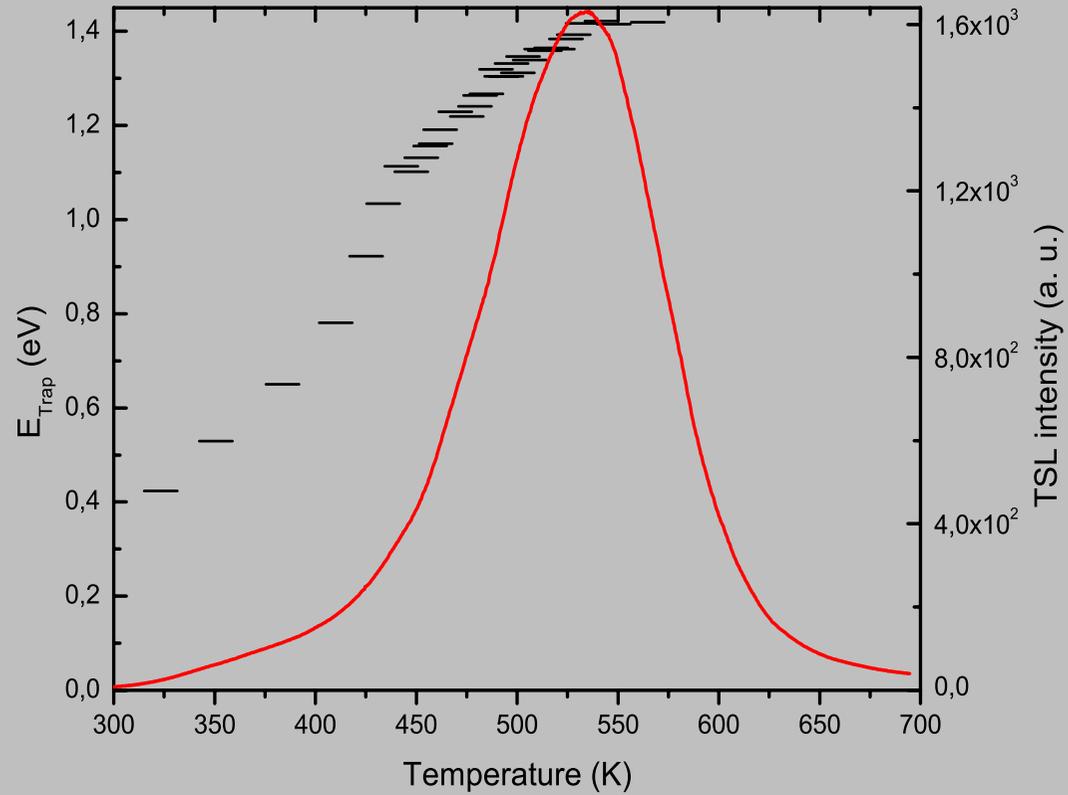
Sous les mêmes conditions d'irradiation et de lecture

TL de quelques fibres canoniques



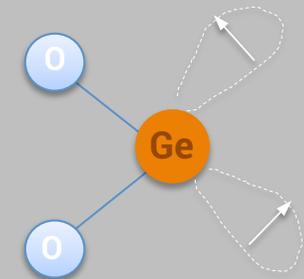
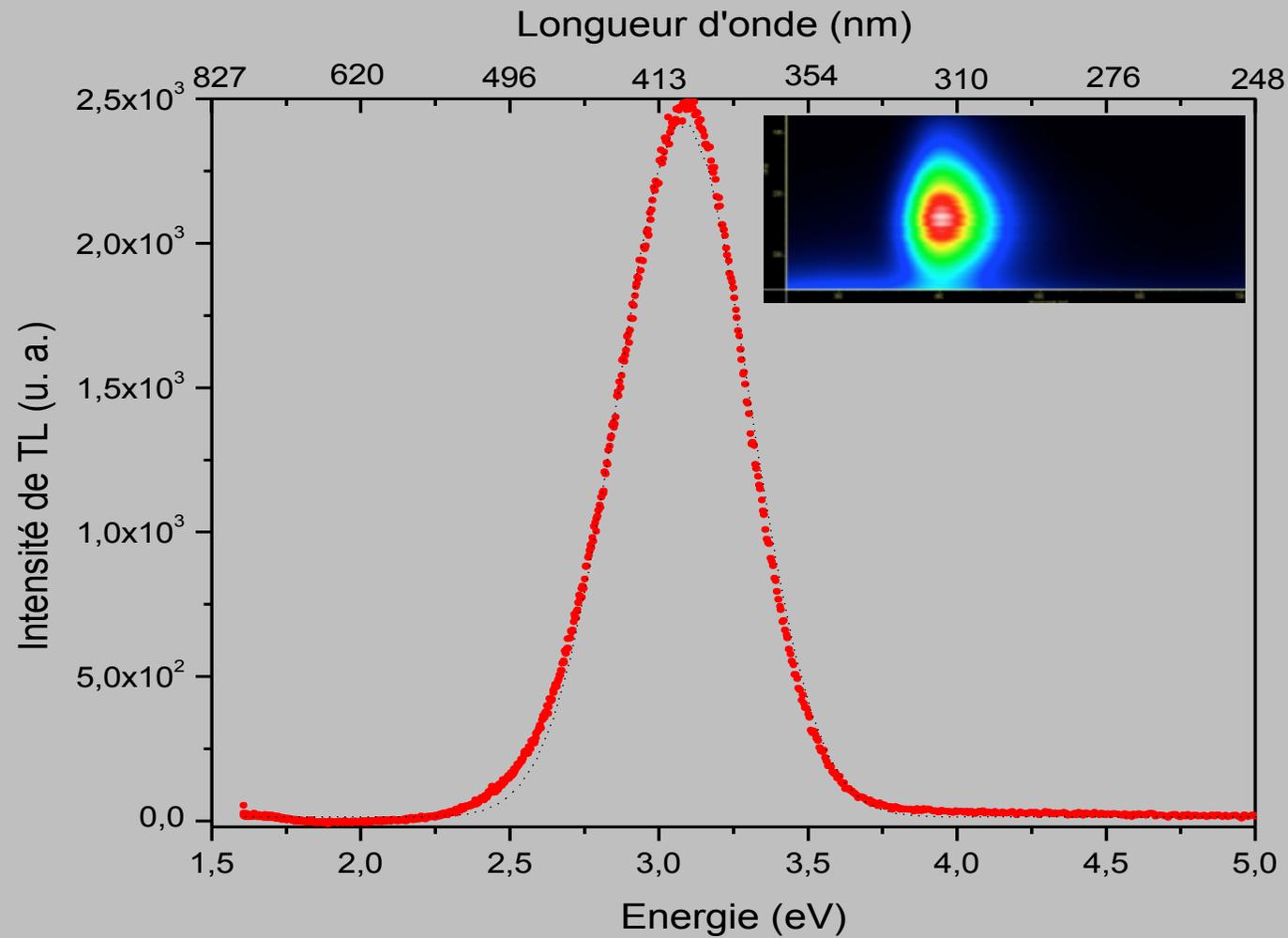
La fibre: Ge est de loin, la plus sensible de toutes: # 10^4

Analyse du pic TL



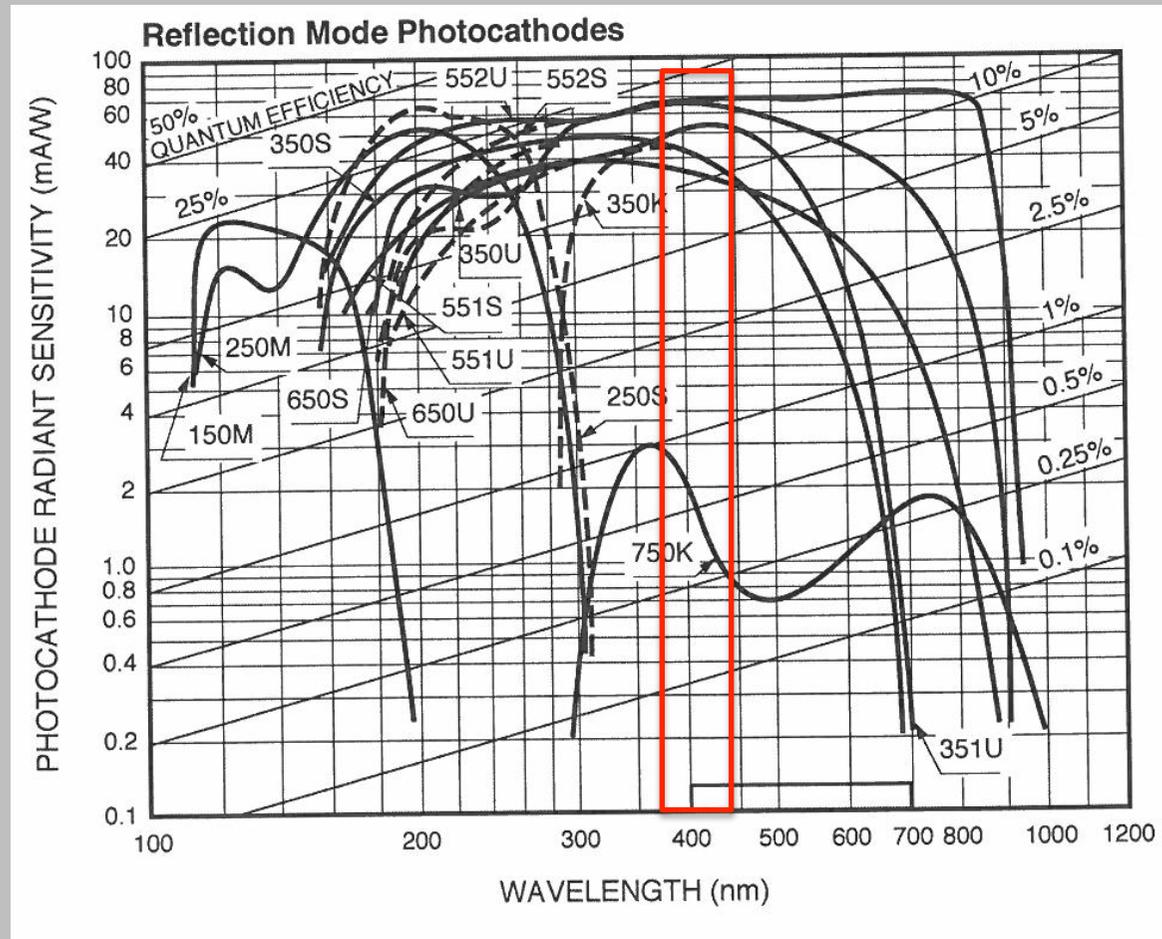
Le pic @ 540 K bien situé pour des tests en dosimétrie par TL
stockage info dose

Emission spectrale



@ 540 K: 3,1 eV (400 nm) \longrightarrow centres GLPC (=Ge:)

Répartition spectrale de l'émission TL



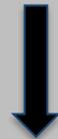
Emission de TL au centre de la BP des PMT

Fibre: Ge en dosimétrie

- forte sensibilité de la réponse à l'irradiation
 - un pic TL idéalement placé (stockage)
- une émission TL au centre de la réponse spectrale des PMT

Fibre: Ge en dosimétrie

- forte sensibilité de la réponse à l'irradiation
 - un pic TL idéalement placé (stockage)
- une émission TL au centre de la réponse spectrale des PMT

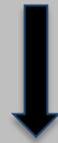


Tests de quelques premiers critères de base

- Réponse en fonction de la dose et du débit de dose
 - Reproductibilités
- Propriétés de fading thermique et optique, de quenching

Fibre: Ge en dosimétrie

- forte sensibilité de la réponse à l'irradiation
 - un pic TL idéalement placé (stockage)
- une émission TL au centre de la réponse spectrale des PMT



Tests de quelques critères de base

- réponse TL en fonction de la dose et du débit de dose
 - Reproductibilités
- Propriétés de fading thermique et optique, de quenching

Par comparaison à 2 TLD du commerce

L'étude comparative

Dosimètre	Origine	Forme taille (mm) / masse (mg)
Al ₂ O ₃ :C (TLD500)	Harshaw Chemical Co.	Monocristal φ5x9 (72)
LiF: Mg, Ti (TLD700)	Harshaw Chemical Co.	Fritté 4x4x2 (23,5)
Fibres optiques GeD _i	iXFiber SAS & LPMC	Poudre 62,5/125 μm (50)

TL des fibres: Ge et des TLD

Dosimètre	Origine	Forme	pic TL (K)	λ_{\max} (nm)
Al ₂ O ₃ :C (TLD500)	/	/	430	420
Fibres GeD _i	/	/	540	400
LiF: Mg, Ti (TLD700)	/	/	490	400

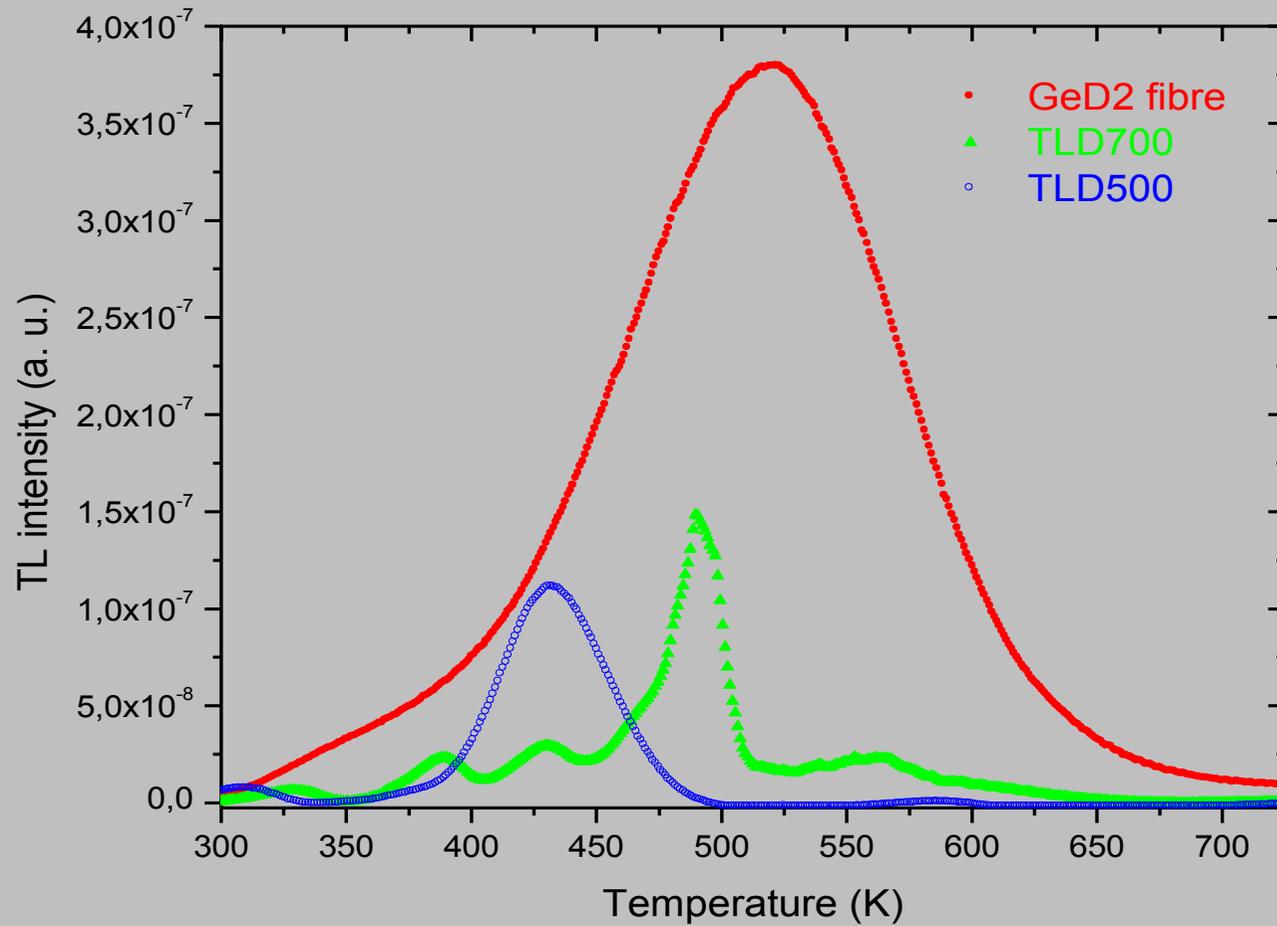
Caractéristiques TL très voisines

Conditions d'utilisation

Dosimètre	Origine	Forme taille (mm)	Pic TL (K)	λ_{\max} (nm)	Traitement thermique
$\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ (TLD500)	/	/	/	/	450°C/1h
Fibres GeD_i	/	/	/	/	aucun
LiF: Mg, Ti (TLD700)	/	/	/	/	400°C/1h & 100°C/2h

L'absence de recuit: un gain de temps important en routine

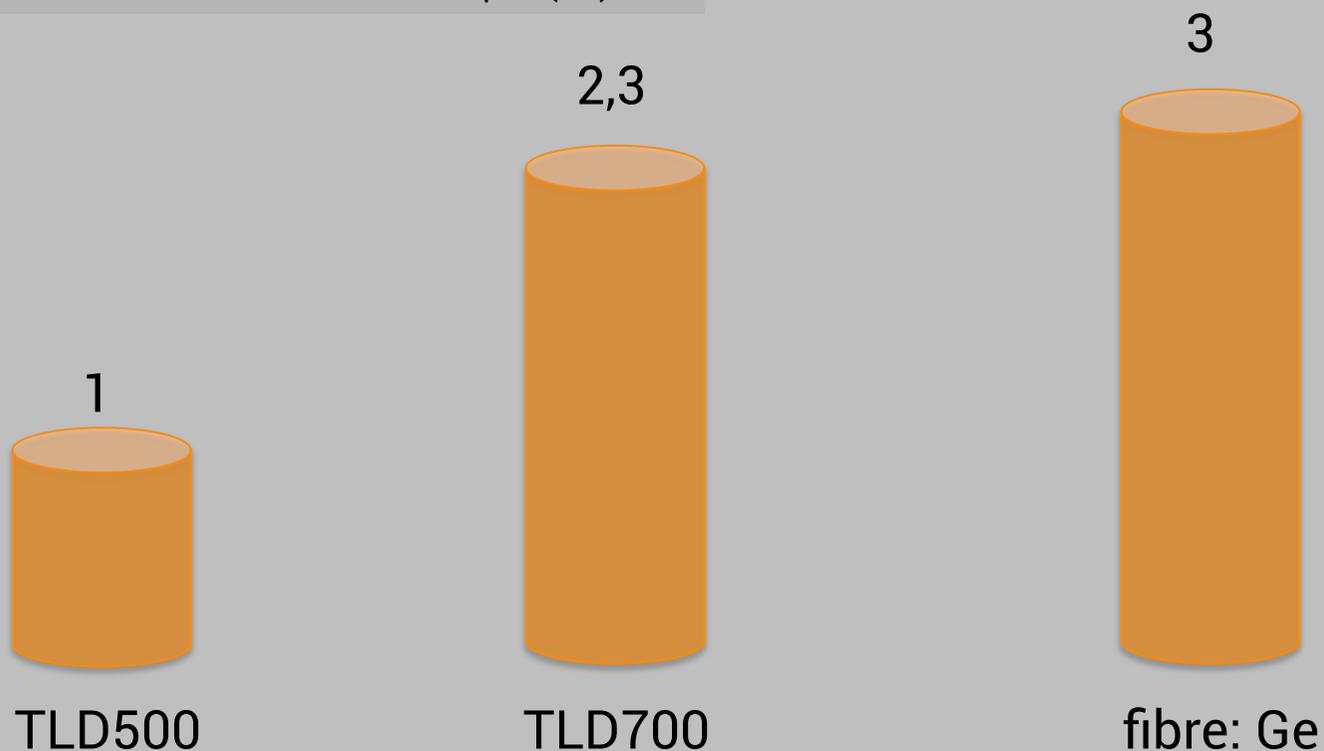
TL de la fibre: Ge et des 2 TLD



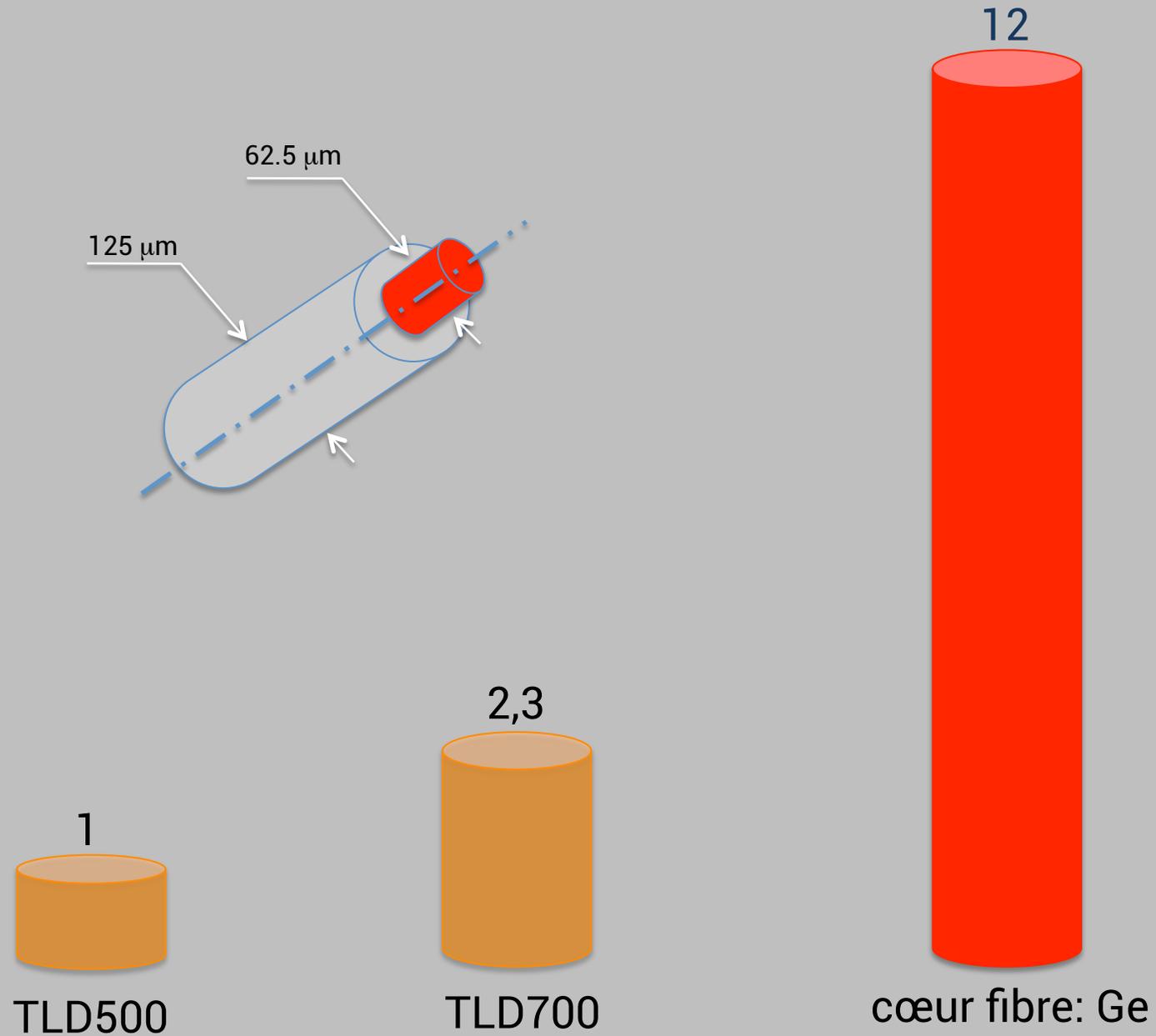
Sous les mêmes conditions d'irradiation et de lecture

Sensibilité de la réponse TL / unité de masse

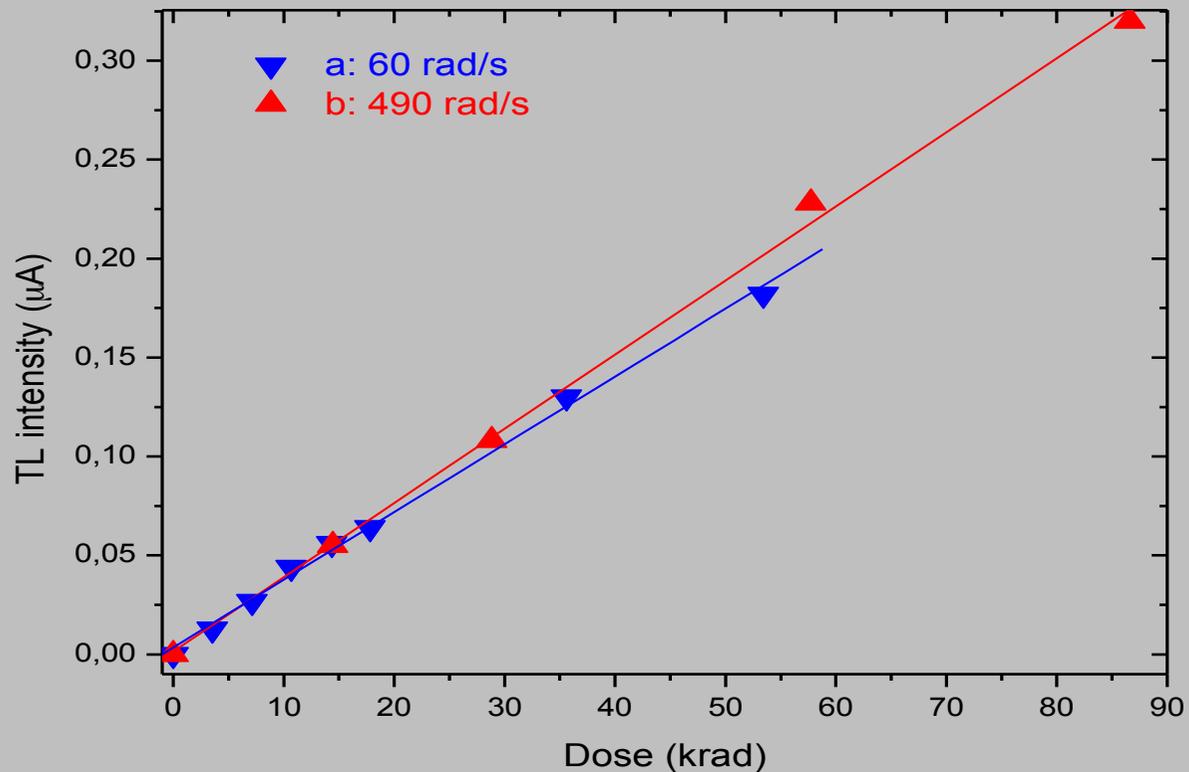
Dosimètre		Forme Taille (mm) / Masse (mg)
Al ₂ O ₃ :C (TLD500)	/	Monocristal φ5x9 (72)
LiF: Mg, Ti (TLD700)	/	Fritté 4x4x2 (23,5)
Fibres optiques GeD _i	/	Poudre 62,5/125 μm (50)



Sensibilité de la réponse TL / unité de masse



Réponse TL en fonction de la dose (X)



- Réponse linéaire sur une large gamme de dose
 - Pas d'effet de débit de dose

Utile en dosimétrie (étalonnage aisé)

Reproductibilité et fading (fibre: Ge)

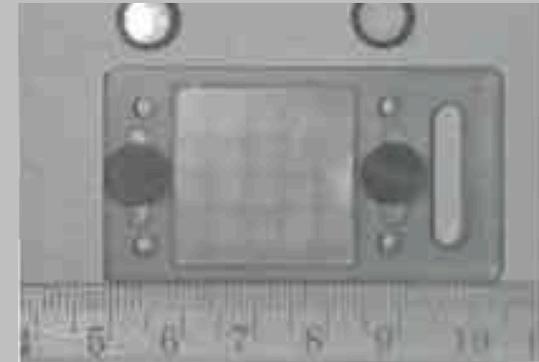
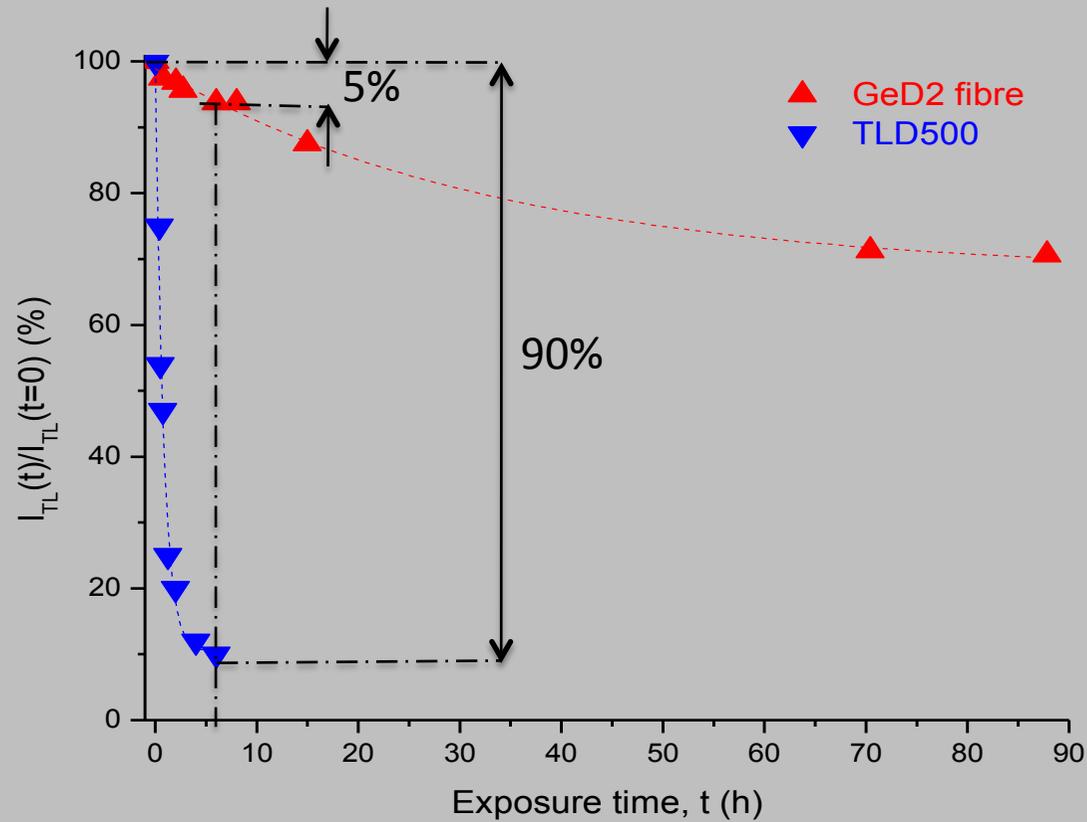
Reproductibilité : DS = 2,8 %
après 5 cycles (irradiation - lecture) successifs

[spé. (TLD700) : 2 %] mais

Fading thermique = 5 %, 8 h post irradiation

Fading optique = 5 %, 6 h post irradiation
30 % , 90 h post irradiation

Pertes induites par fading optique

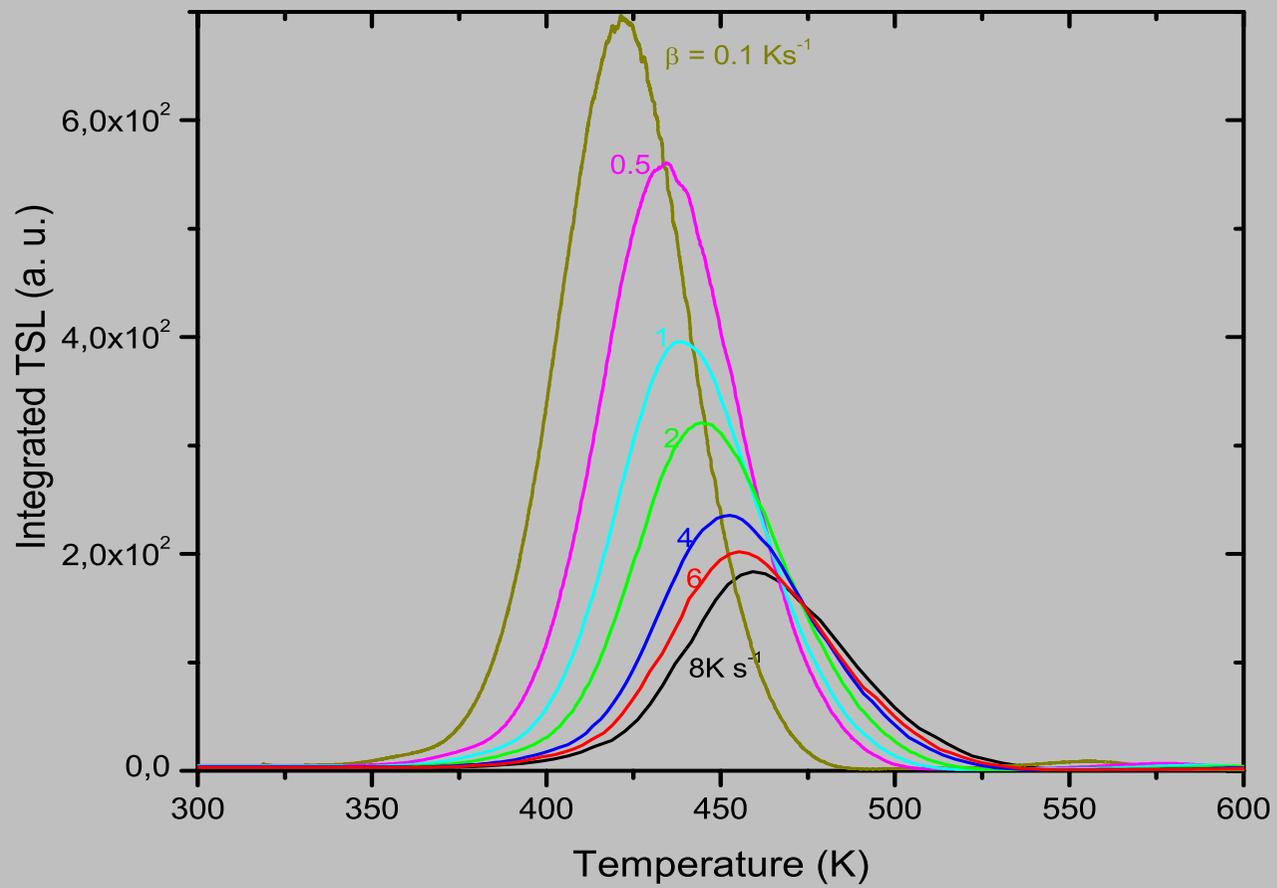


Après 6 h d'exposition à la lumière du laboratoire, le déclin est de:

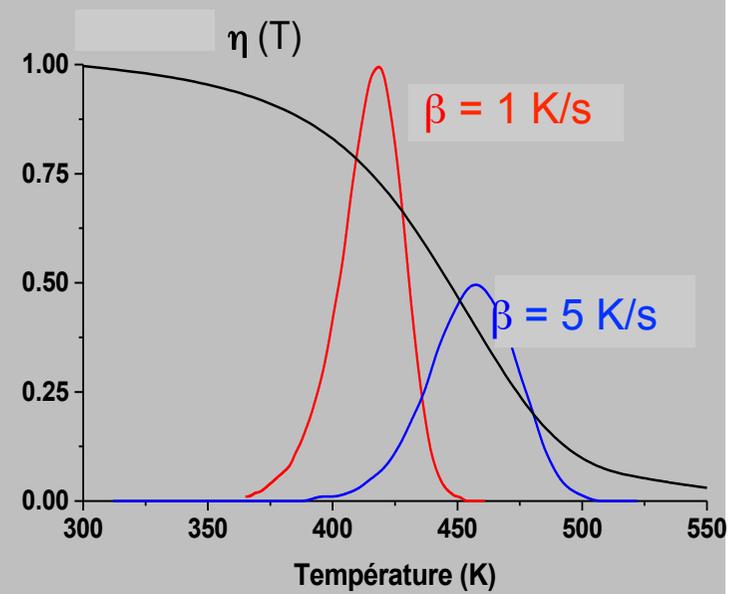
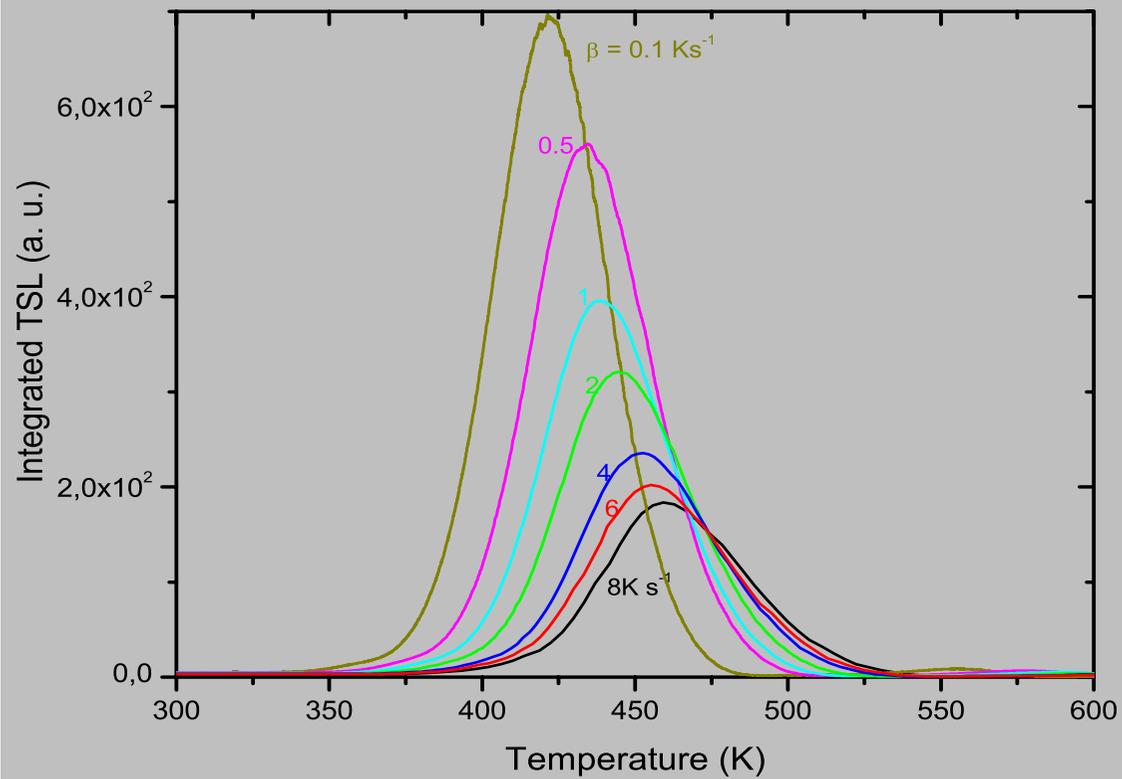
5 % dans la fibre: Ge

et 90 % dans TLD500 !

Effet vitesse de chauffe sur le TLD500

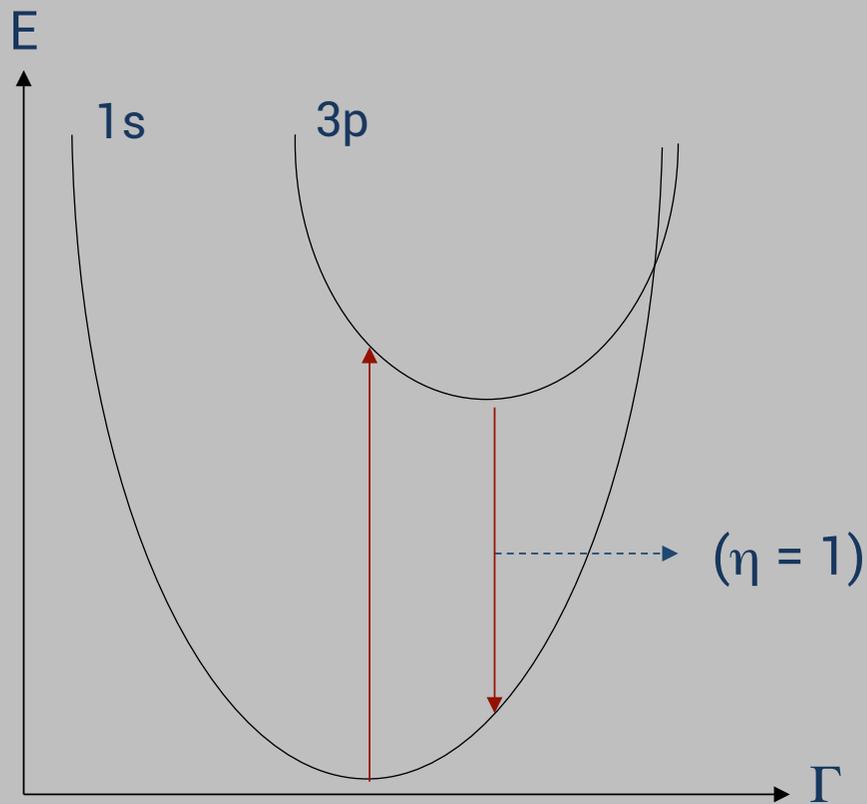


Effet vitesse de chauffe sur le TLD500

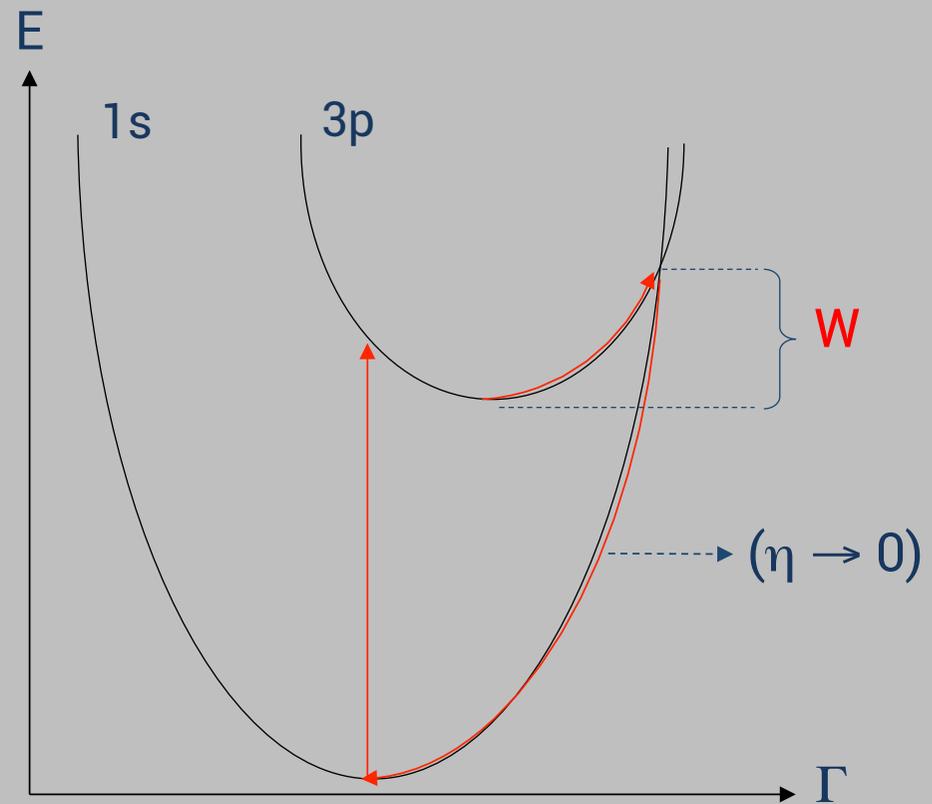


Extinction thermique de la luminescence

$$\eta(T) = [1 + C \exp(-W/kT)]^{-1}$$

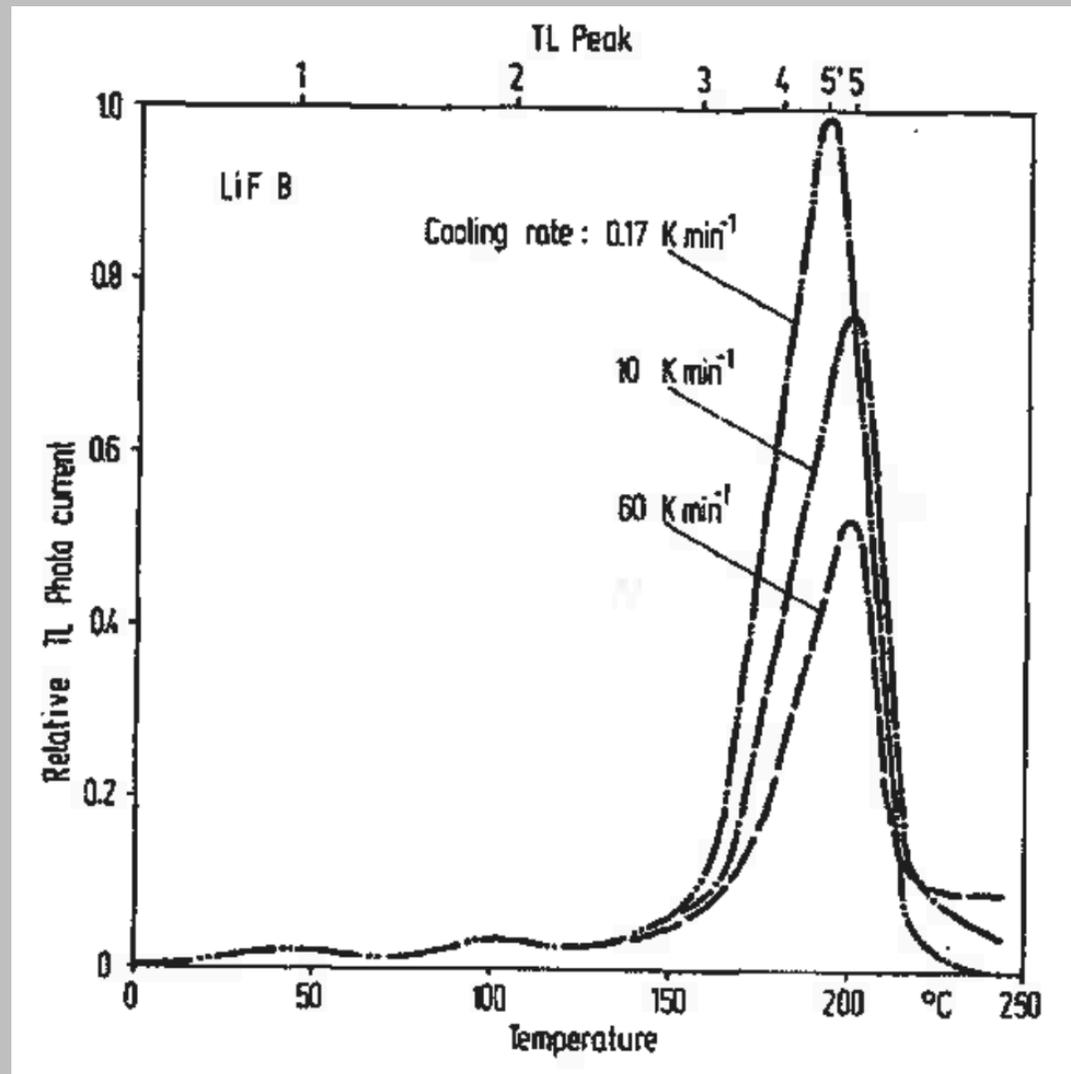


@ basse température (β faible)

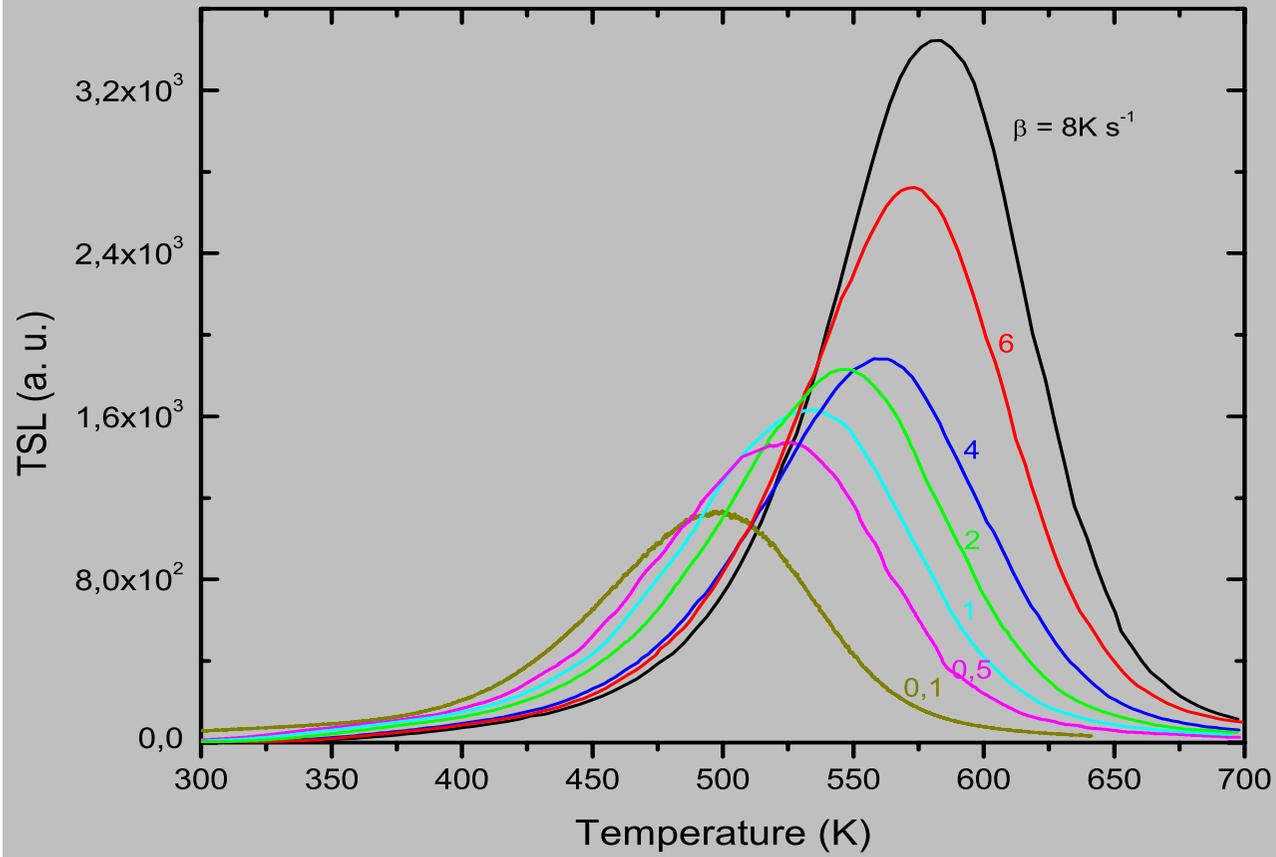


@ haute température (β élevée)

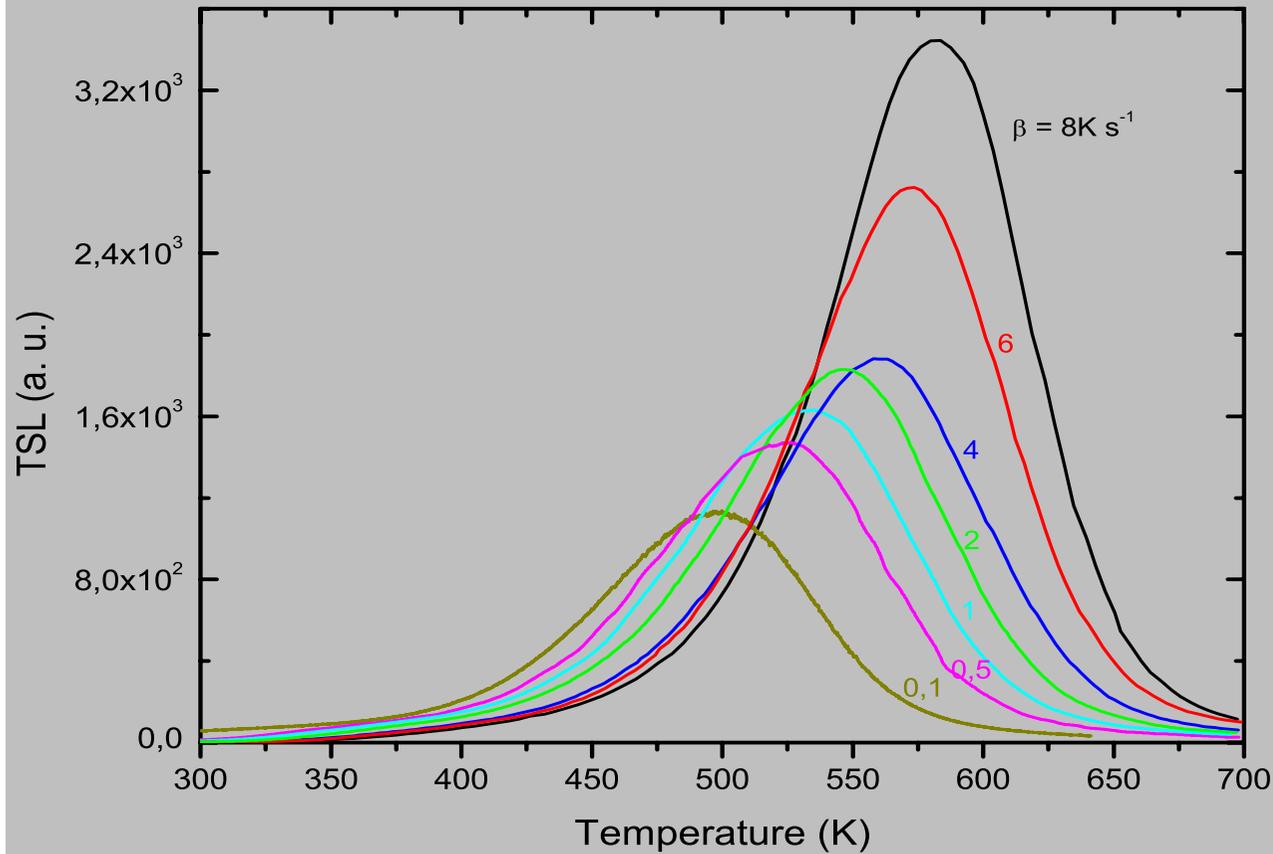
Effet (moindre) vitesse de chauffe sur le TLD100



Effet vitesse de chauffe sur la fibre: Ge



Effet vitesse de chauffe sur la fibre: Ge



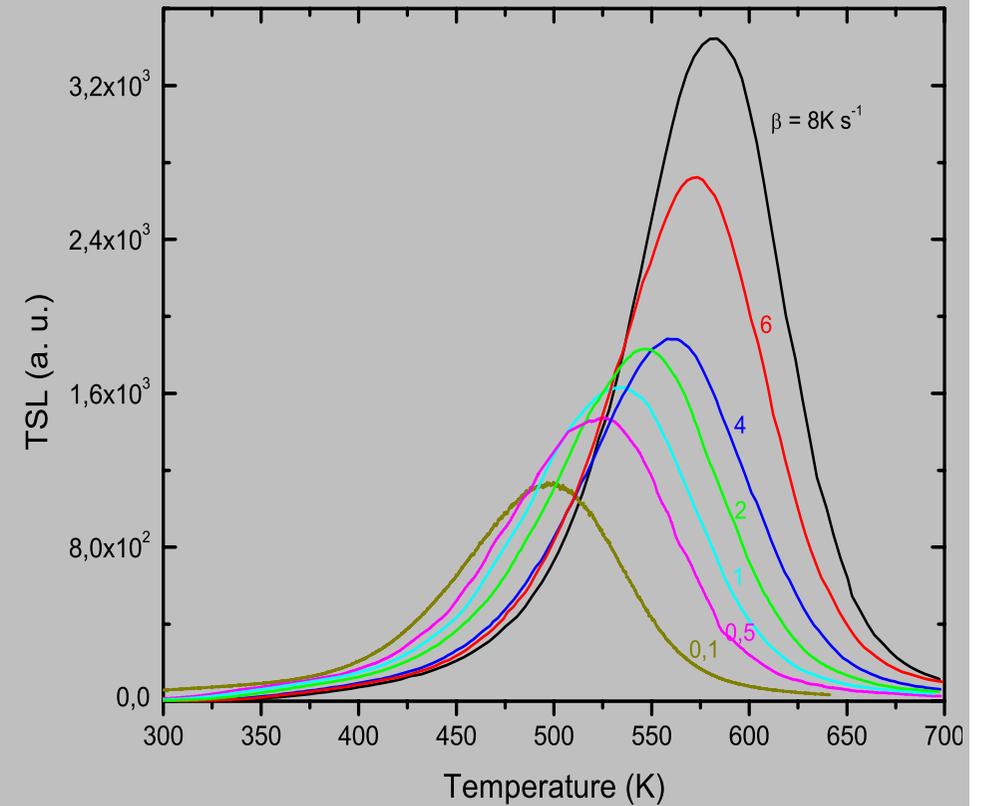
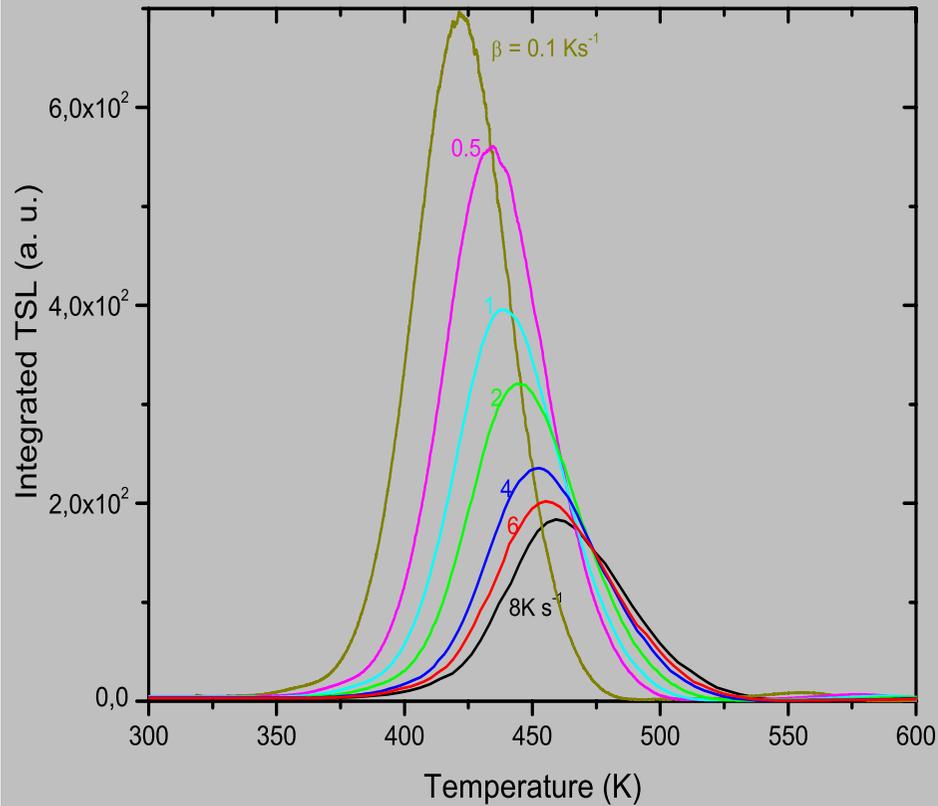
$$\eta(T) = p \times \gamma \times q$$

p : prob. de dépiégeage
 γ : taux de recombinaison
 q : efficacité quantique

Probablement due à l'augmentation de γ

Effet vitesse de chauffe sur la fibre: Ge

Quand la vitesse de chauffe croît de 0,1 à 8 K/s



η (TLD500) décroît d'un facteur 4

η (LiF) décroît d'environ 1/3

η (fibre: Ge) croît d'un facteur 4

Conclusions

- Forte sensibilité à l'irradiation
- Bonne linéarité de la réponse $f(D)$
- Indépendance de \dot{D}
- Reproductibilité des mesures

fibres: Ge satisfait pleinement aux critères requis pour un dosimètre TL

Conclusions

- Forte sensibilité de la réponse TL
- Bonne linéarité de la réponse $f(D)$
- Indépendance de \dot{D}
- Reproductibilité des mesures

fibres: Ge satisfait pleinement aux critères requis pour un dosimètre TL

TLD500 et surtout TLD700 nécessitent un protocole de recuit fastidieux

la fibre: Ge peut être réutilisée sans aucun traitement particulier

Conclusions

- Forte sensibilité de la réponse TL
- Bonne linéarité de la réponse $f(D)$
- Indépendance de \dot{D}
- Reproductibilité des mesures

fibres: Ge satisfait pleinement aux critères requis pour un dosimètre TL

TLD500 et surtout TLD700 nécessitent un protocole de recuit fastidieux
la fibre: Ge peut être réutilisée sans aucun traitement particulier

TLD500 est très sensible à la lumière. Beaucoup de précautions
alors que la fibre: Ge a une meilleure tenue

Conclusions sur la comparaison

- Forte sensibilité de la réponse TL
- Bonne linéarité de la réponse $f(D)$
- Indépendance de \dot{D}
- Reproductibilité des mesures

fibres: Ge satisfait pleinement aux critères requis pour un dosimètre TL

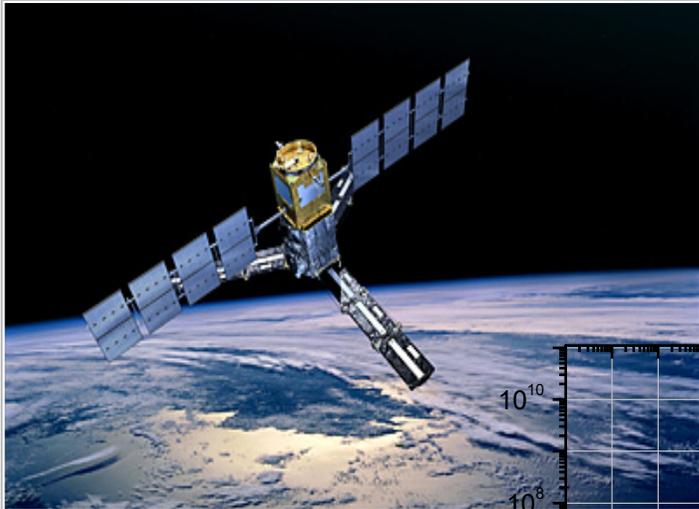
TLD500 et surtout TLD700 nécessitent protocole de recuit fastidieux
la fibre: Ge peut être réutilisée sans aucun traitement particulier

TLD500 est très sensible à la lumière. Nécessite beaucoup de précautions
alors que la fibre: Ge a une meilleure tenue

TLD700 et surtout TLD500 perdent leur efficacité TL avec la vitesse de chauffe
alors qu'elle croît dans le cas de la fibre: Ge

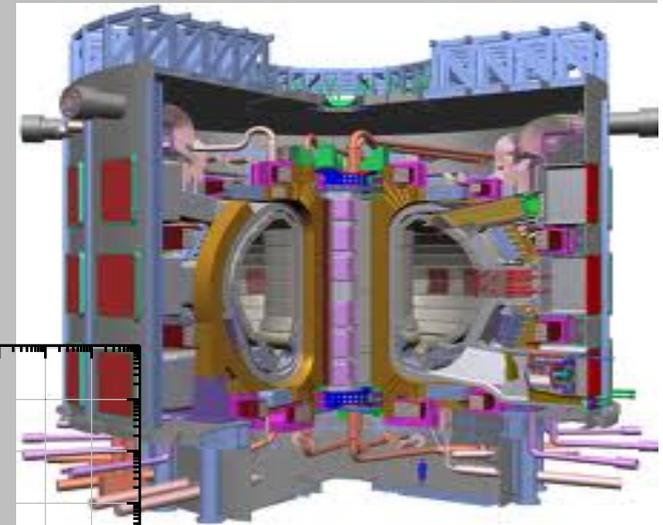
2. Tenue de la fibre: Ge dans divers milieux radiatifs

Milieux radiatifs



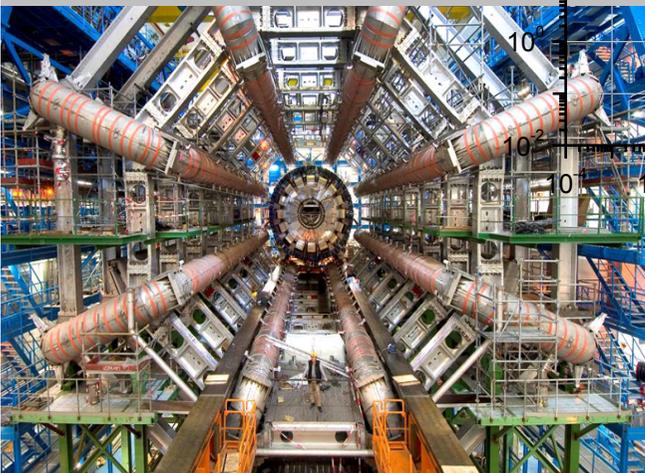
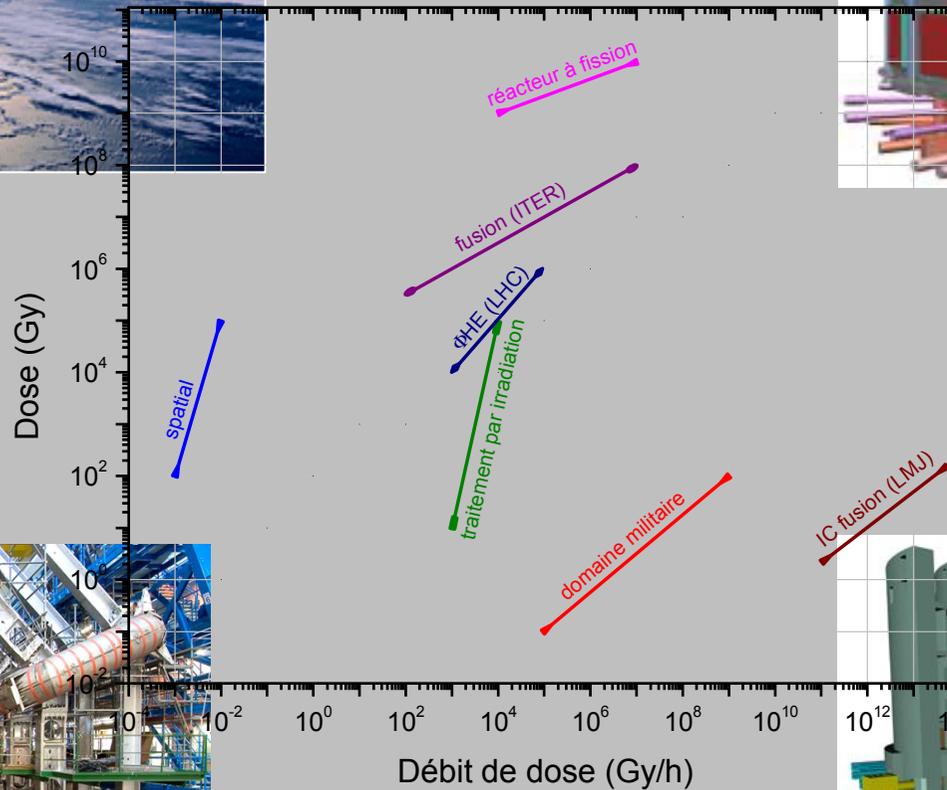
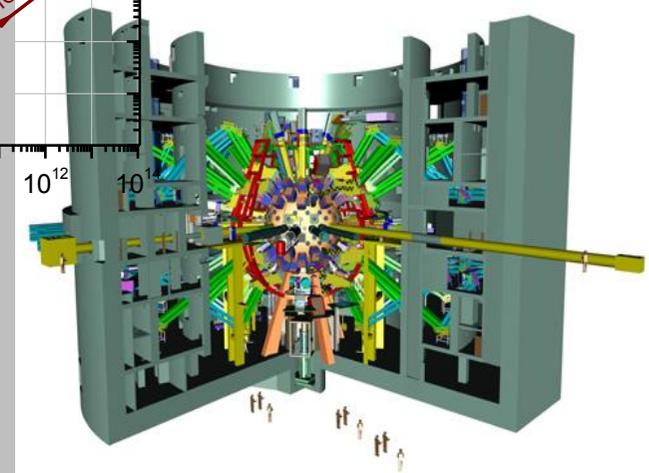
spatial (p, e-)

LHC (n, γ)



ITER (γ)

LMJ (n, γ)



Les irradiations

RX : 8 keV - tube (Cu, 45 kV), LPMC, Nice

R γ : 1 MeV - source ^{60}Co , TRAD, Toulouse

Neutrons : $\left[\begin{array}{l} 0,8 \text{ MeV @ PROSPERO} \\ 14 \text{ MeV @ SAMES} \end{array} \right]$ CEA, Valduc

protons de 63 MeV : $\left[\begin{array}{l} \text{TRIUMF, Vancouver} \\ \text{Cyclotron biomédical, Nice} \end{array} \right]$

Fibres GeD_i étudiées (i = 1, 2, 3)

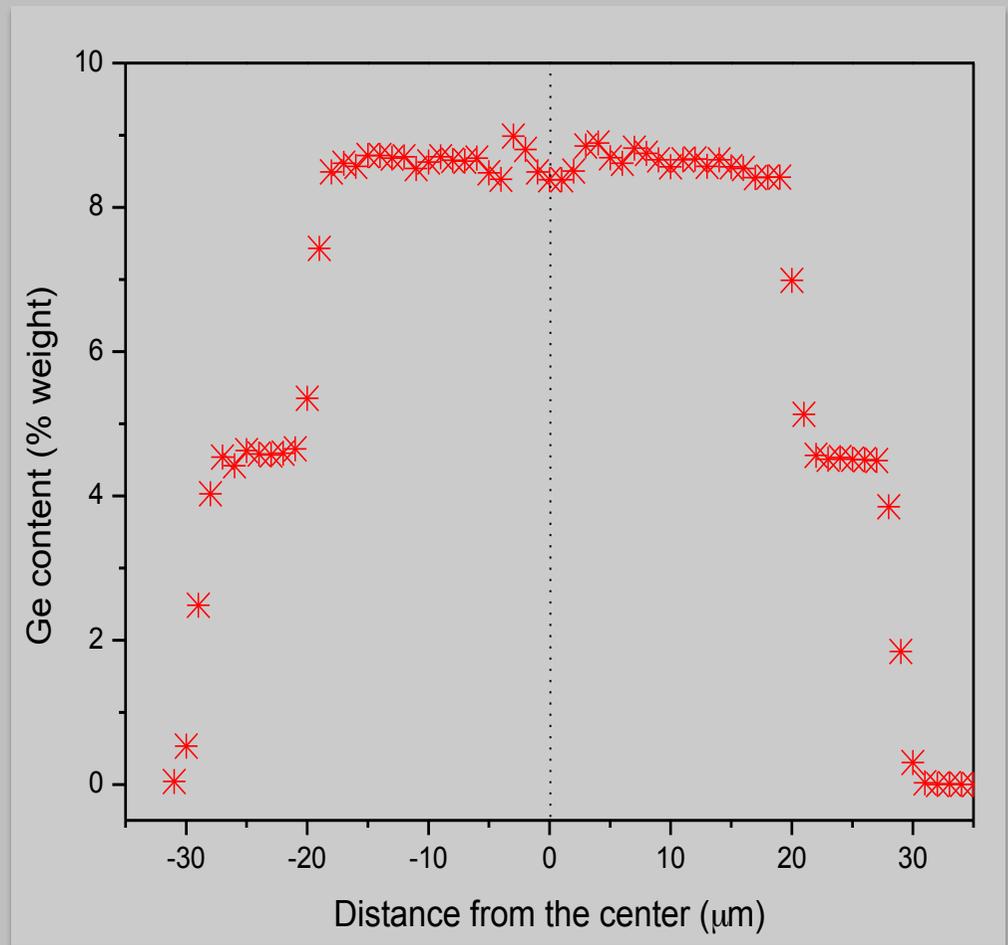
3 fibres MM (62,5/125 μm) issues de la même préforme produite par MCVD

Fibres	Vitesse étirage (m/min.)
GeD ₁	70
GeD ₂	40
GeD ₃	22

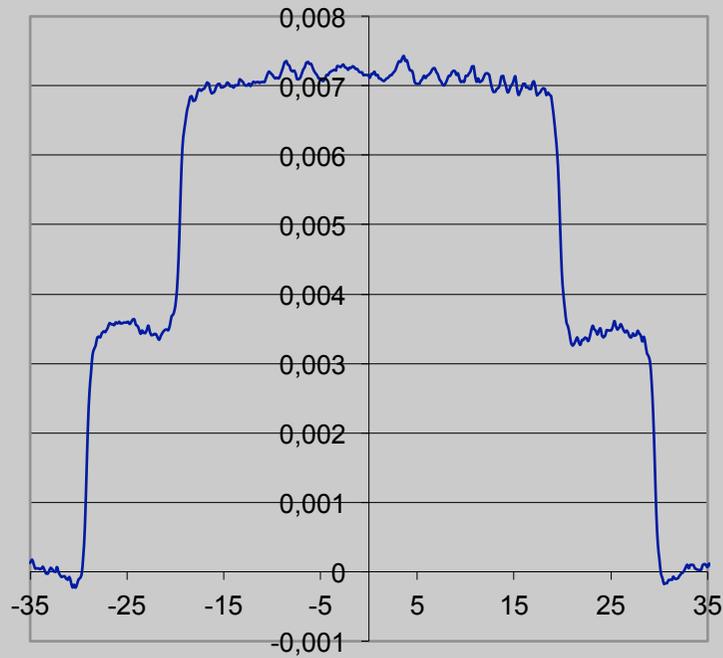
Fibres GeD_i étudiées (i = 1, 2, 3)

3 fibres MM (62,5/125 μm) issues de la même préforme produite par MCVD

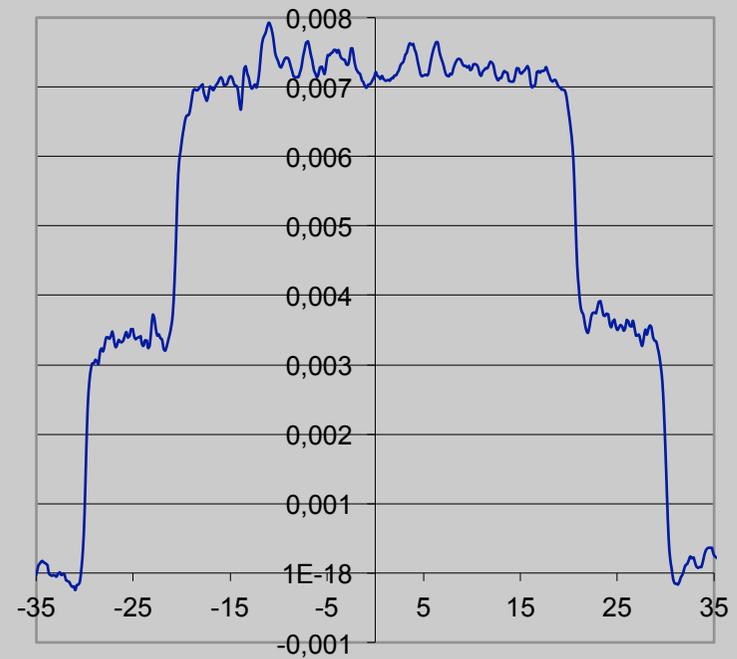
Fibres	Vitesse étirage (m/min.)
GeD ₁	70
GeD ₂	40
GeD ₃	22



Reproductibilité du procédé de synthèse

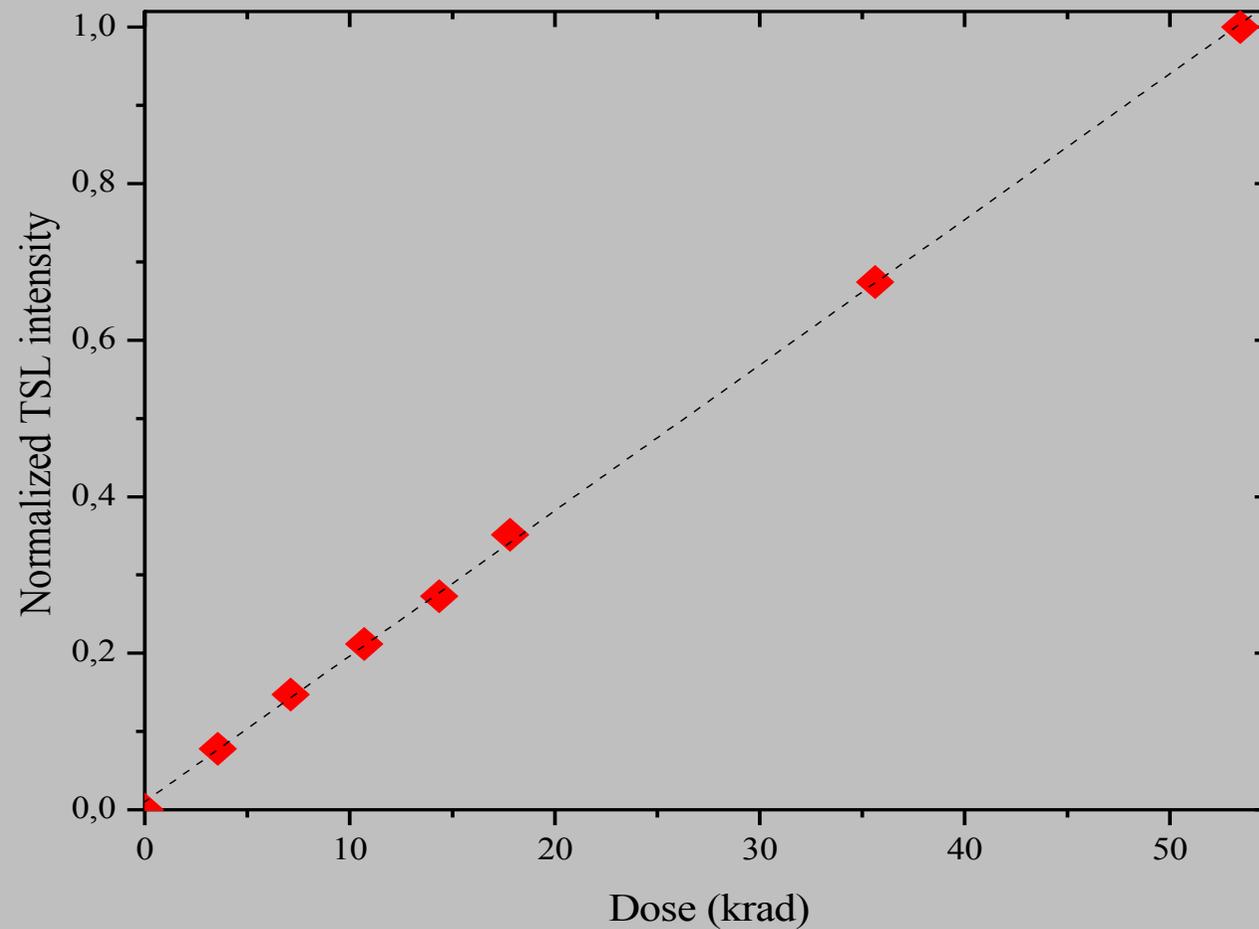


iXFiber



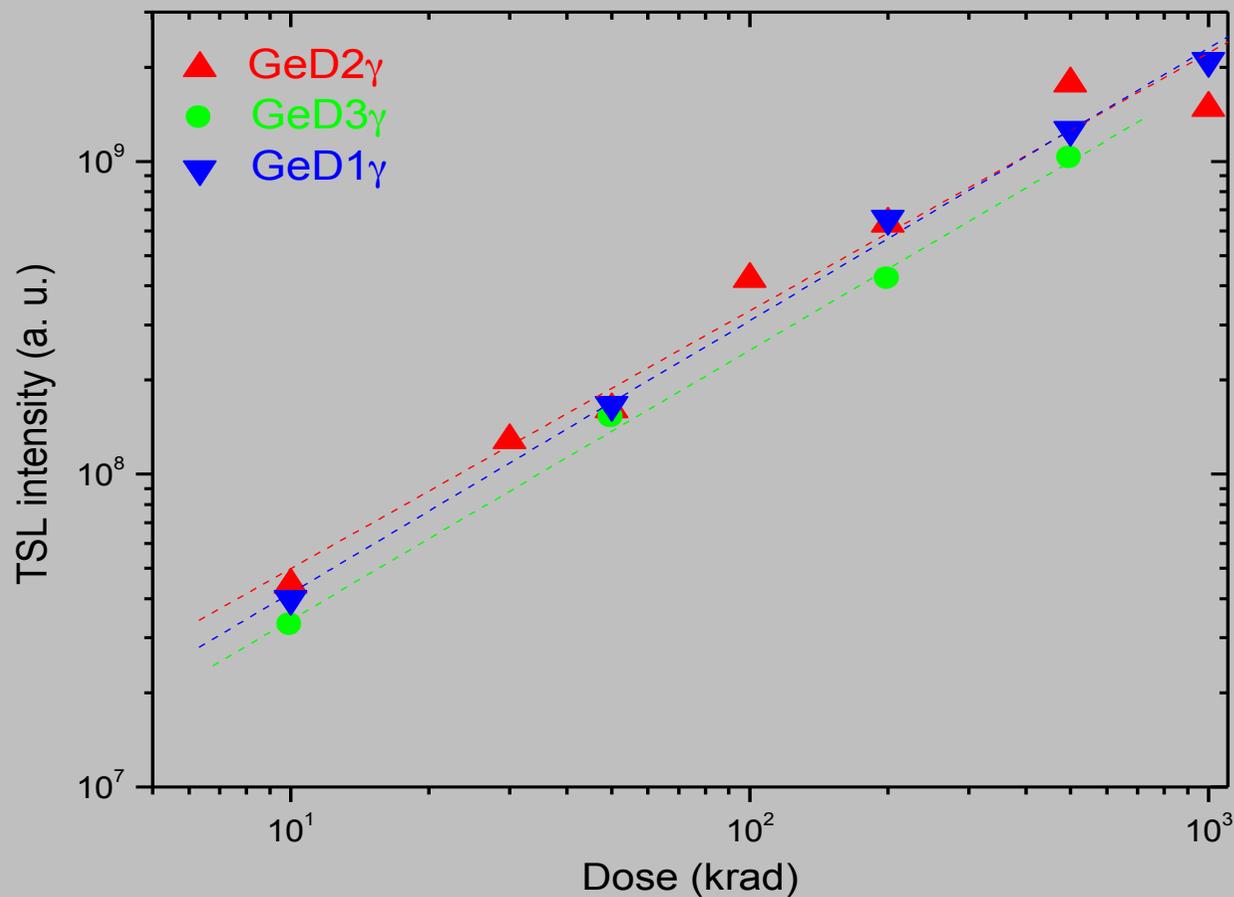
LPMC

Réponse TL sous X (60 rad/s)



Réponse linéaire sur une large gamme de dose
Pas d'effet de débit de dose

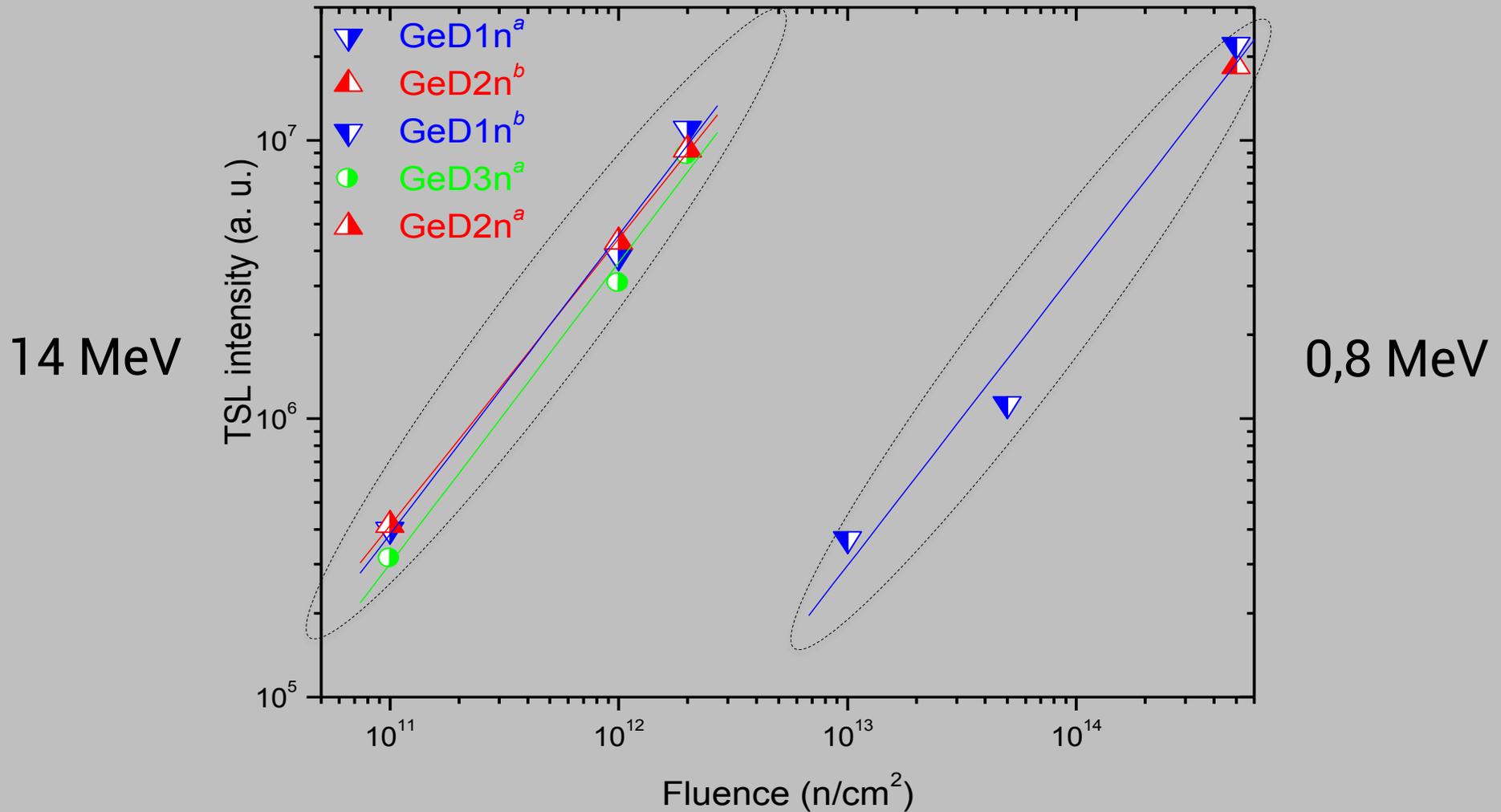
Réponse TL sous γ (500 rad/h)



Linéaire jusque 1 Mrad

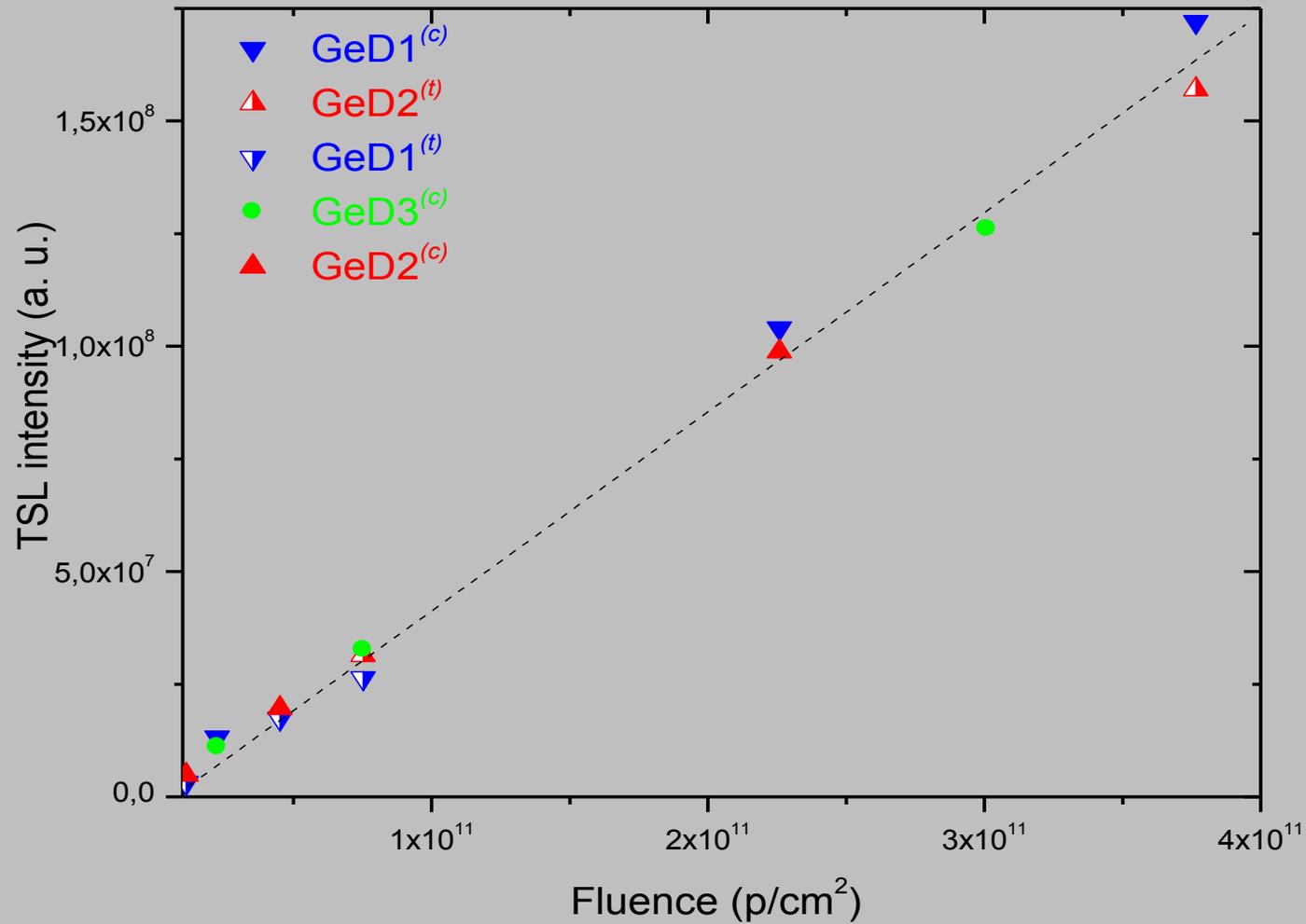
Même réponse @ 30 & 100 rad/h : aucun effet de débit de dose

Réponses TL aux neutrons



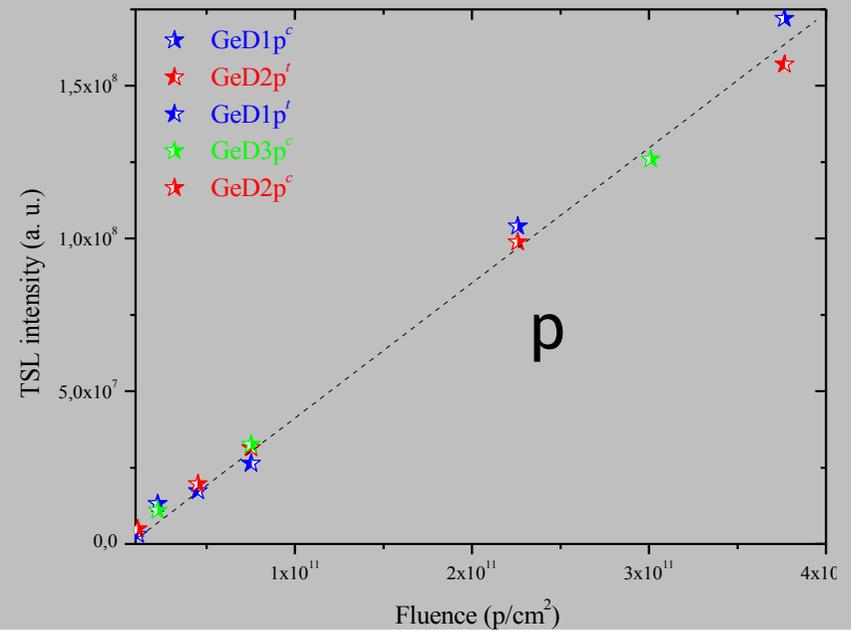
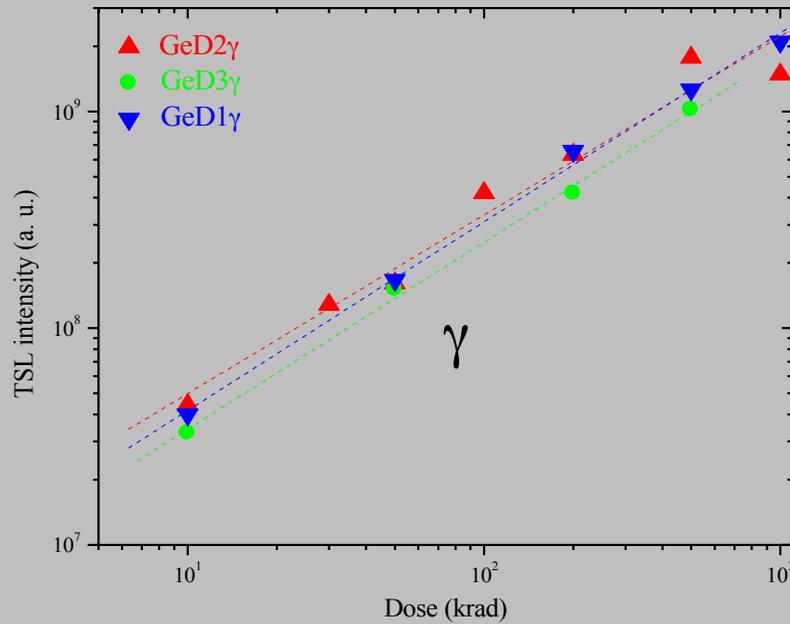
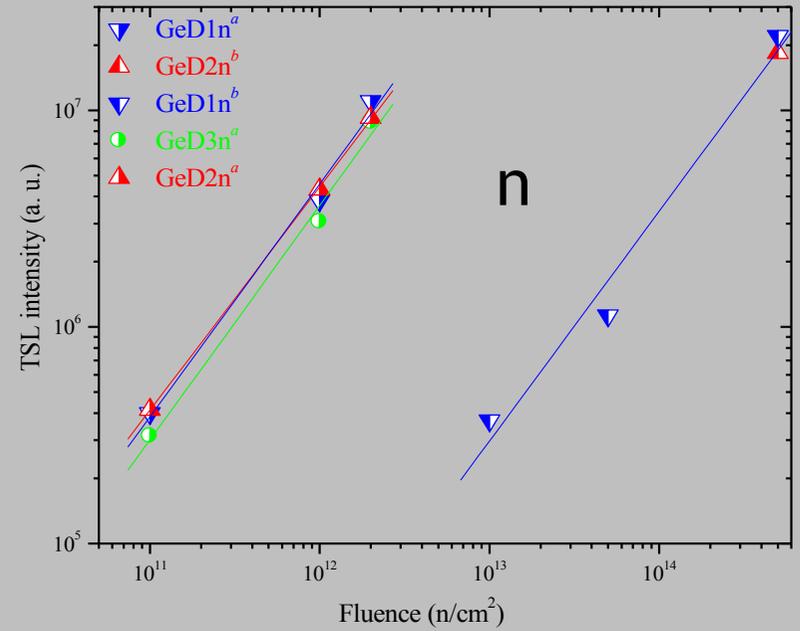
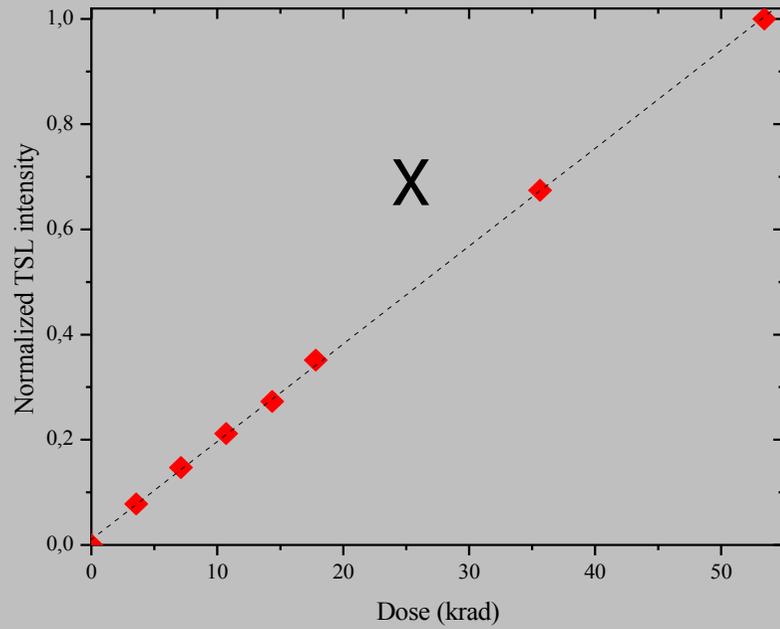
Même comportement pour les deux énergies de neutrons

Réponse TL aux protons de 63 MeV



TL linéaire avec la fluence quelle que soit la fibre

Réponses TL aux irradiations X, γ , n et p



TL en fonction de la dose ionisante

Modèles bien connus:

dose ionisante en fonction de la fluence
pour chaque particule à une énergie donnée

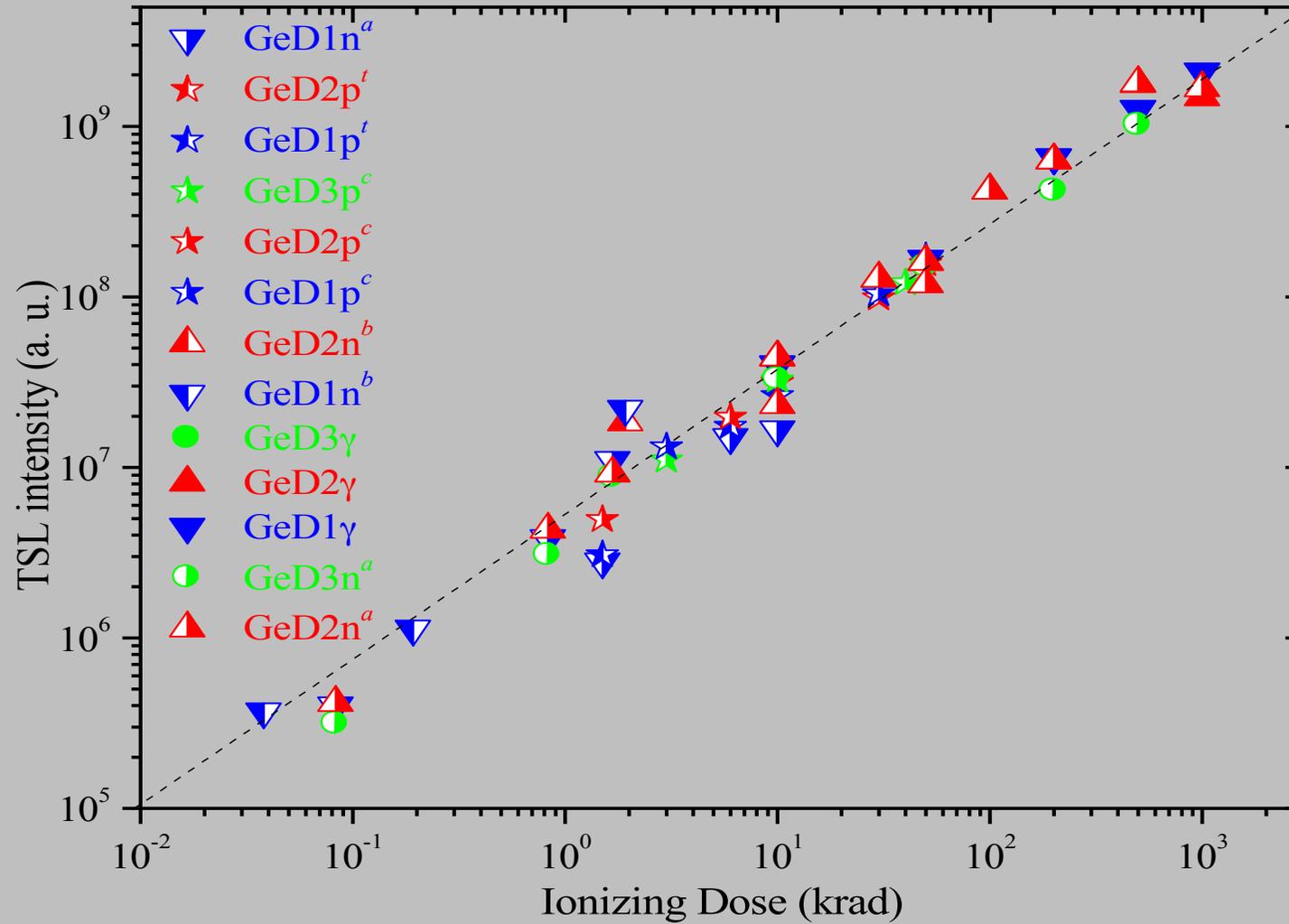
1 rad (Si) \cong

$\cong 7,53 \times 10^6$ p/cm² de protons de 63 MeV

$\cong 1,2 \times 10^9$ n/cm² de neutrons de 14 MeV

$\cong 2,6 \times 10^{11}$ n/cm² de neutrons de 0,8 MeV

Une réponse TL "universelle" de la fibre: Ge



Conclusions

La fibre: Ge est un bon candidat pour les applications de dosimétrie par TL

Conclusions

La fibre: Ge est un bon candidat pour les applications de dosimétrie par TL

La fibre: Ge satisfait à tous les critères requis pour la dosimétrie par TL avec de **meilleures performances que les 2 TLD du commerce**

Conclusions

La fibre: Ge est un bon candidat pour les applications de dosimétrie par TL

La fibre: Ge satisfait à tous les critères requis pour la dosimétrie par TL avec de meilleures performances que les 2 TLD du commerce

La position haute pic dosimétrique: utilisation **fibre: Ge en milieu très hostile**
(T élevées et irradiations)

Conclusions

La fibre: Ge est un bon candidat pour les applications de dosimétrie par TL

La fibre: Ge satisfait à tous les critères requis pour la dosimétrie par TL avec de meilleures performances que les 2 TLD du commerce

La position haute pic dosimétrique: utilisation fibre: Ge en milieu très hostile (T élevées et irradiations)

La forte sensibilité TL + effet vitesse de chauffe:

utile pour les faibles niveaux de dose (μ dosimétrie, environnement)

Et populaire auprès des dosimétristes (gain de temps en routine)

Conclusions

La fibre: Ge est un bon candidat pour les applications de dosimétrie par TL

La fibre: Ge satisfait à tous les critères requis pour la dosimétrie par TL avec de meilleures performances que les 2 TLD du commerce

La position haute pic dosimétrique: utilisation fibre: Ge en milieu très hostile (T élevées et irradiations)

La forte sensibilité TL + effet vitesse de chauffe:
utile pour les faibles niveaux de dose (μ dosimétrie, environnement)
clinique: populaire auprès des dosimétristes (gain de temps en routine)

Conditions de synthèse et optimisation de [Ge]: une nouvelle gamme de dosimètres à fibre beaucoup plus performants encore que les TLD actuels

Conclusions

La fibre: Ge est un bon candidat pour les applications de dosimétrie par TL

La fibre: Ge satisfait à tous les critères requis pour la dosimétrie par TL avec de meilleures performances que les 2 TLD du commerce

La position haute pic dosimétrique: utilisation fibre: Ge en milieu très hostile (T élevées et irradiations)

La forte sensibilité TL + effet vitesse de chauffe:
utile pour les faibles niveaux de dose (mdosimétrie, environnement)
clinique: populaire auprès des dosimétristes (gain de temps en routine)

Conditions de synthèse et optimisation de [Ge]: une nouvelle gamme de dosimètres à fibre beaucoup plus performants encore que les TLD actuels

Aucune dépendance de la vitesse de fibrage:
Réduction des coûts (déjà faibles) de production de ce type de dosimètres

Merci pour votre attention

Fibres : détecteurs RL/OSL

Mise au point dispositif de détection par fibre: RL/OSL

- Pour les photons:

Fabrication optimisée en [Ge ou ...] de nouvelles fibres

- Pour les neutrons:

- Fabrication de fibres avec \neq dopants: Li, B et Gd
- Fabrication de fibres (peu ou pas sensibles aux radiations) pour le dépôt
- Essais en champs mixtes (n, γ) avec γ/n variable

En parallèle et en collaboration:

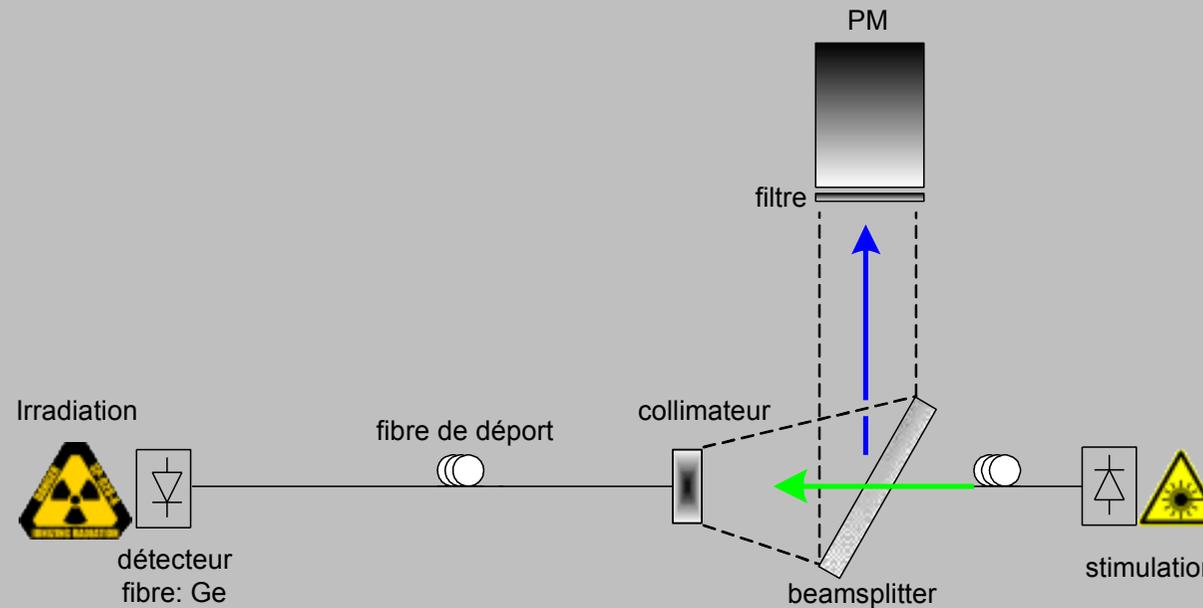
Caractérisation défauts radio-induits et étude mécanismes mis en jeu

- Luminescence par Microscopie Confocale
- Mesures d'Absorption RadioInduite
- Irradiations X (anticathode W)

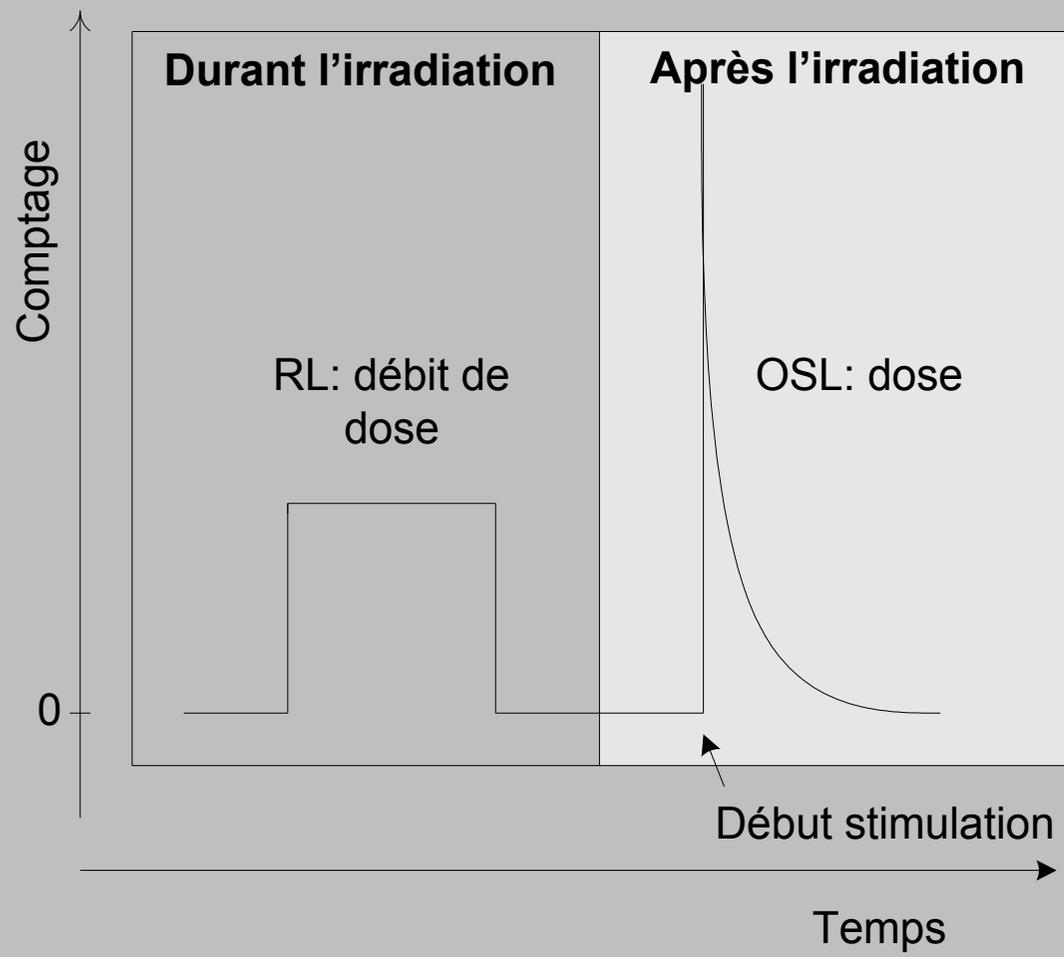


Dispositif fibré de détection RL/OSL

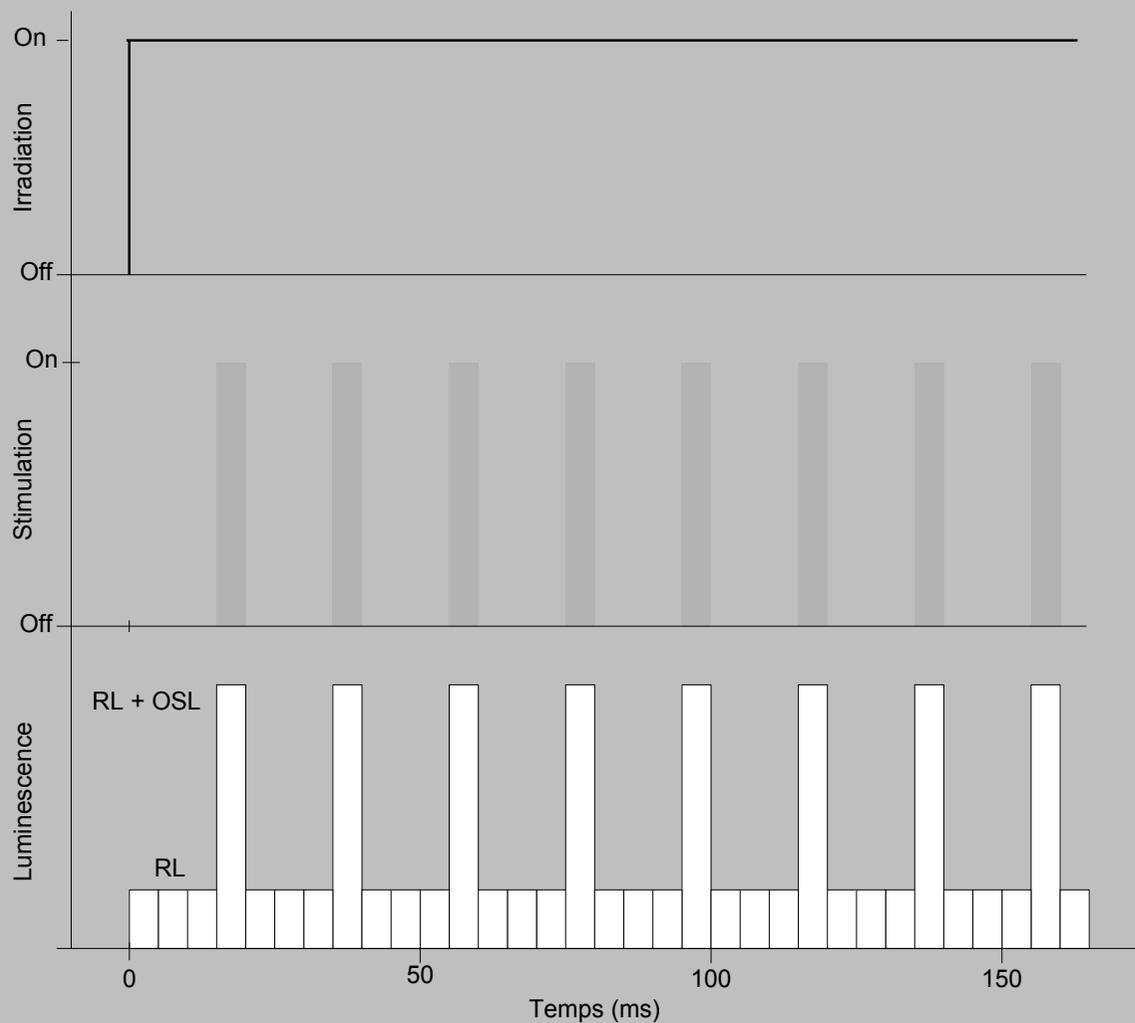
- Surveillance en ligne et à distance du débit de dose (RL)
- Lectures rapides de la dose absorbée (OSL)



Discrimination RL/OSL par stimulation périodique de l'OSL

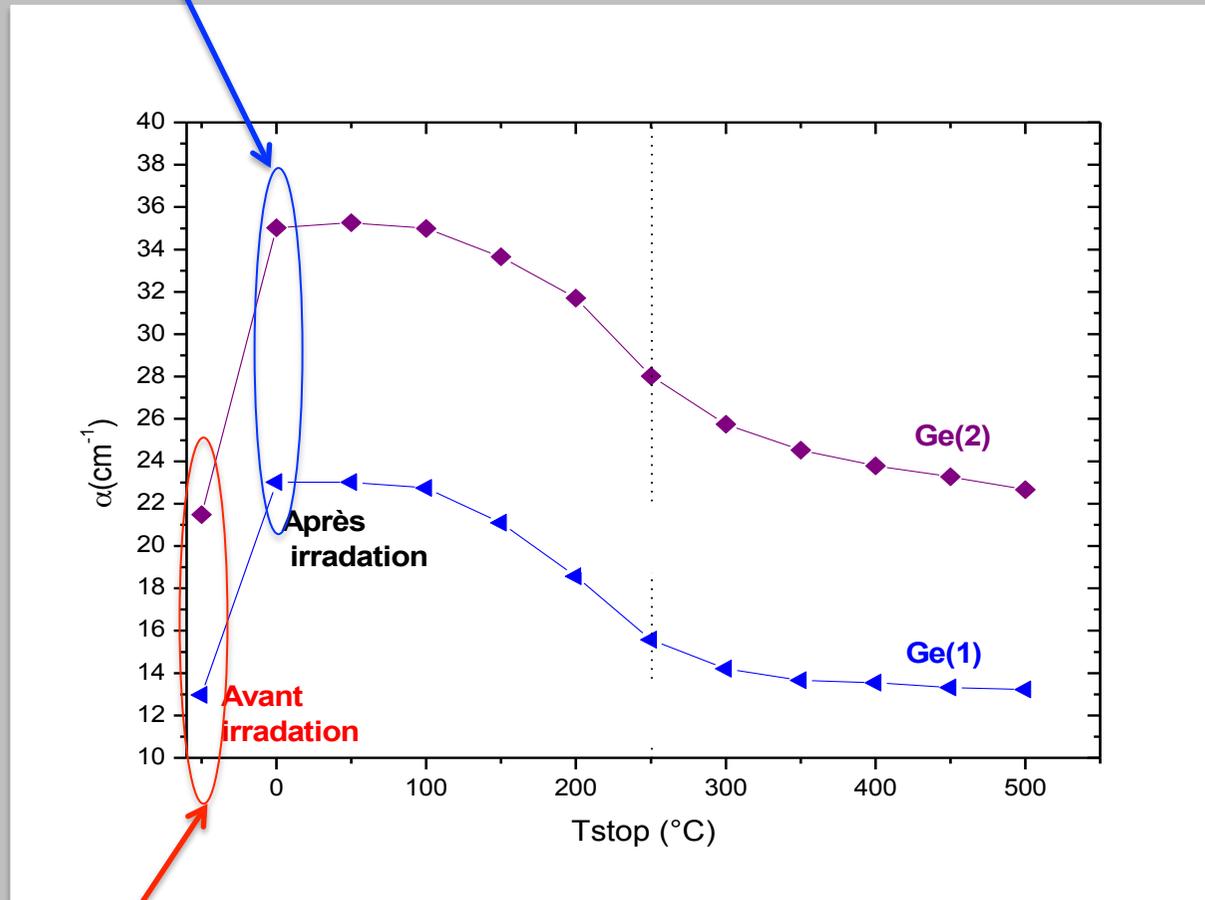


Discrimination RL/OSL par stimulation périodique de l'OSL



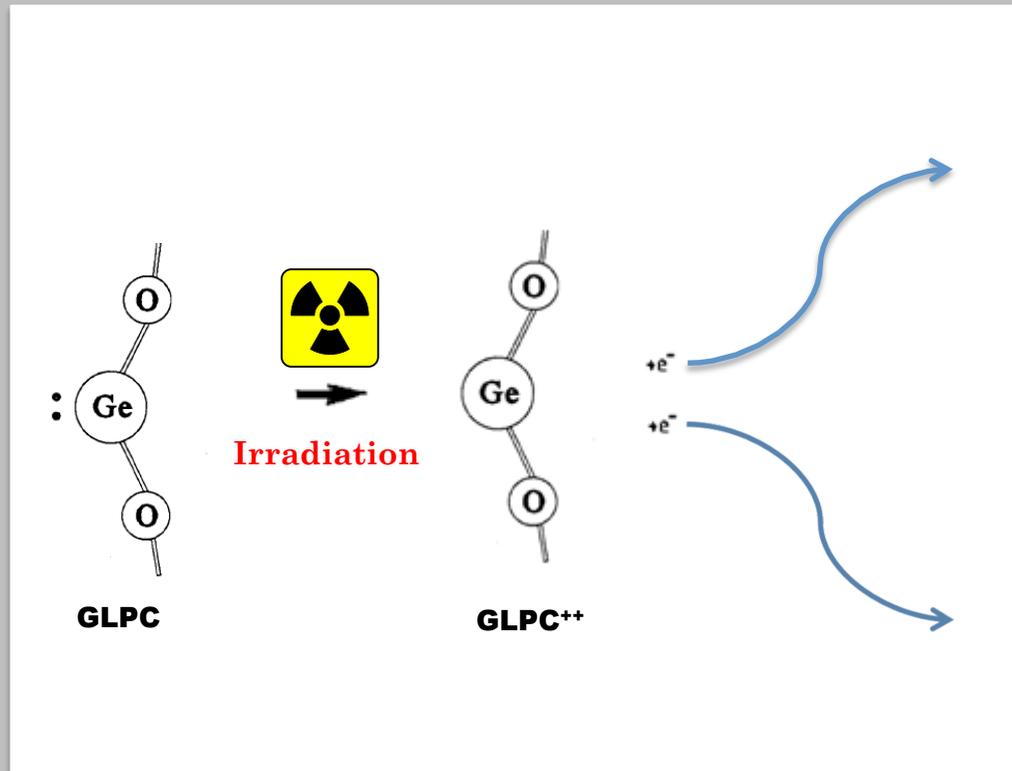
Guérison thermique

Après irradiation



Avant irradiation

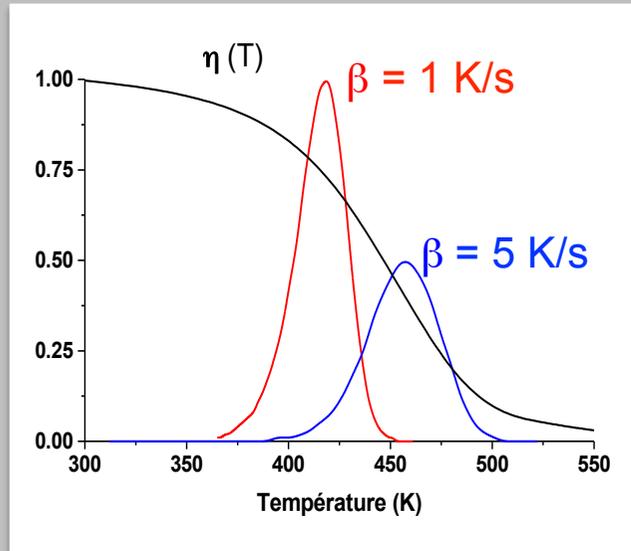
TSL mechanism



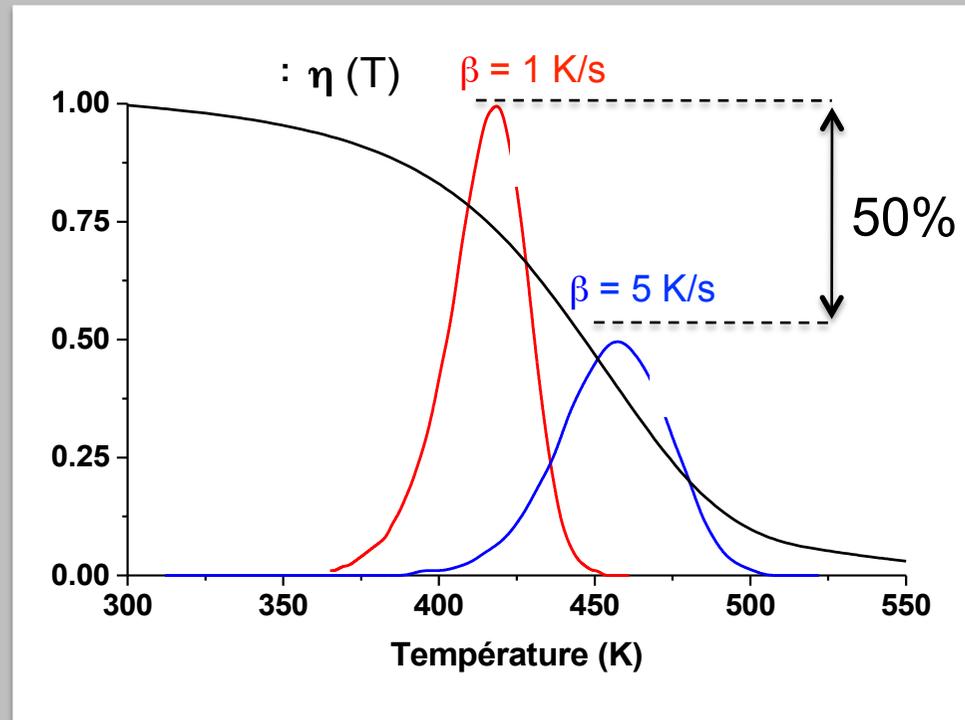
ESR: \longrightarrow



Heating rate effect (TLD500)



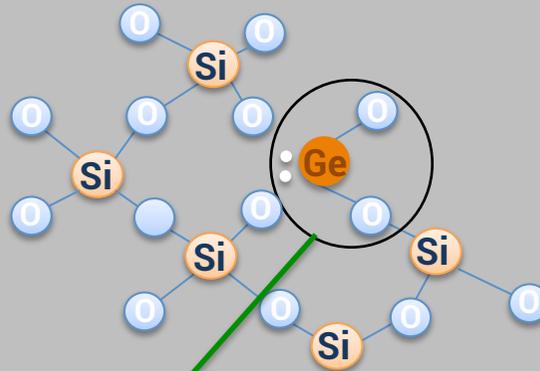
Heating rate effect (TLD500)



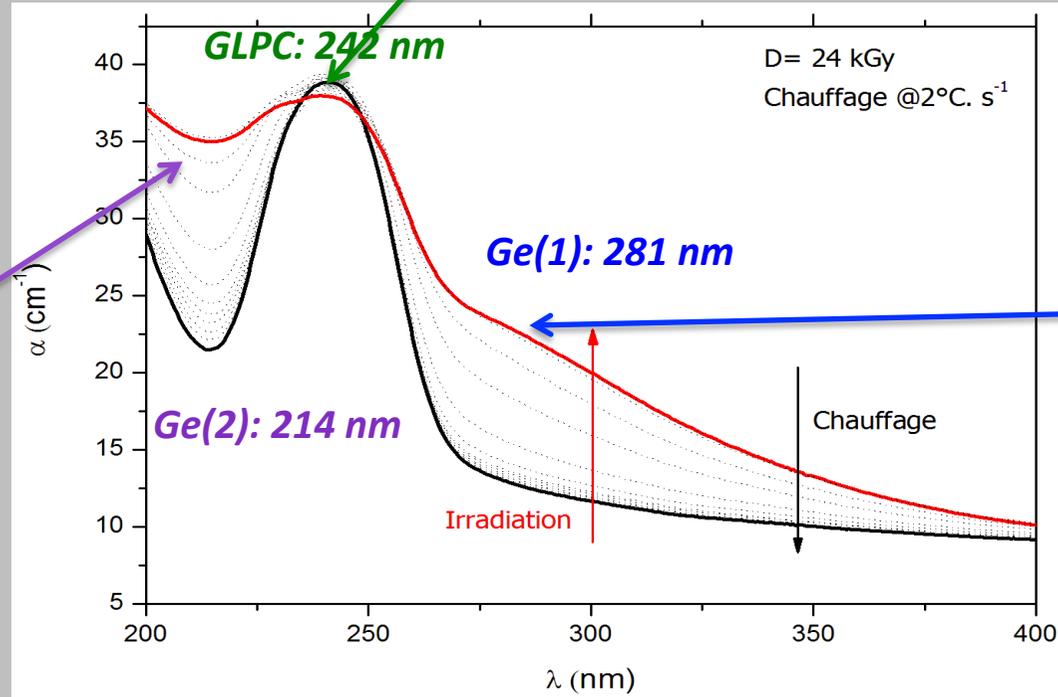
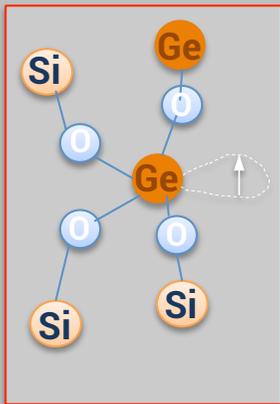
TLD500 : efficiency \searrow by 50% when $\beta \nearrow$ only by 5
(thermal quenching)

Cas des fibres dopées Ge

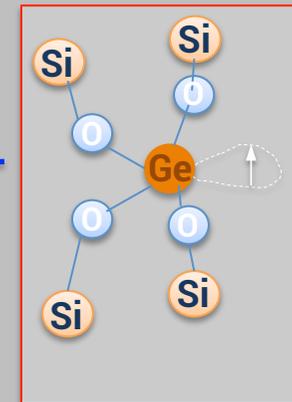
Germanium Lone Pair Centre (GLPC)



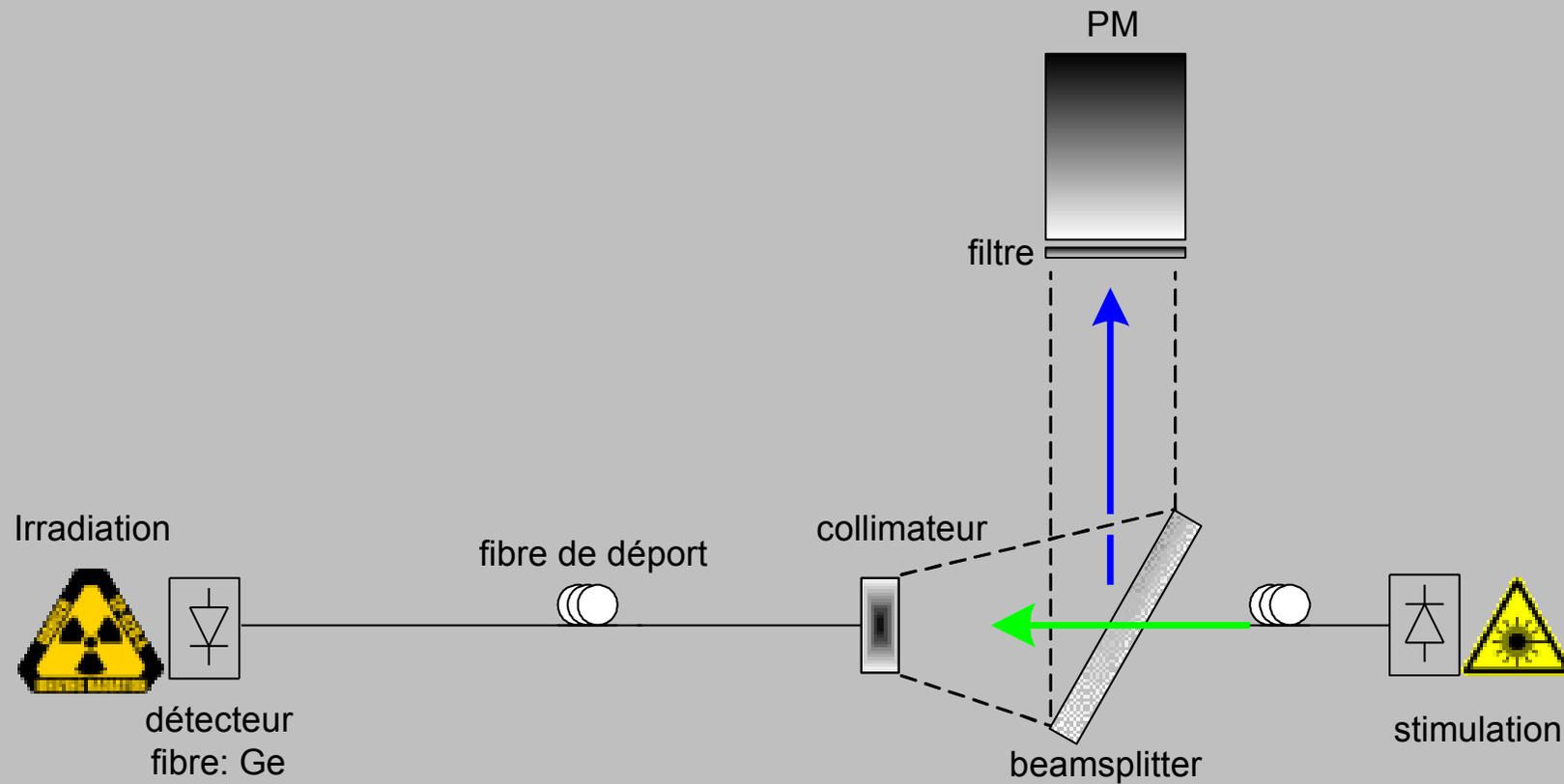
Ge(2)



Ge(1)

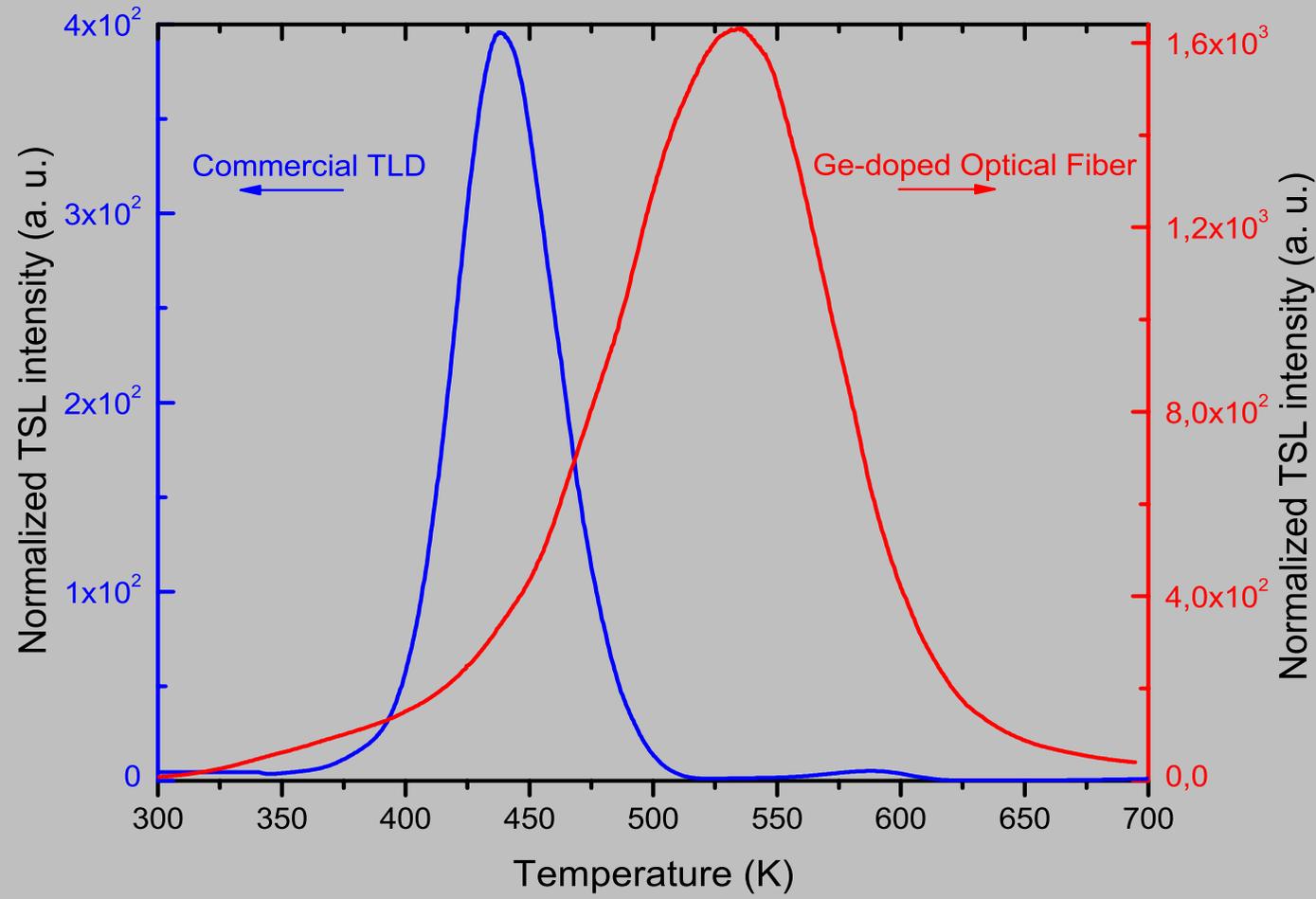


Dispositif de lecture OSL

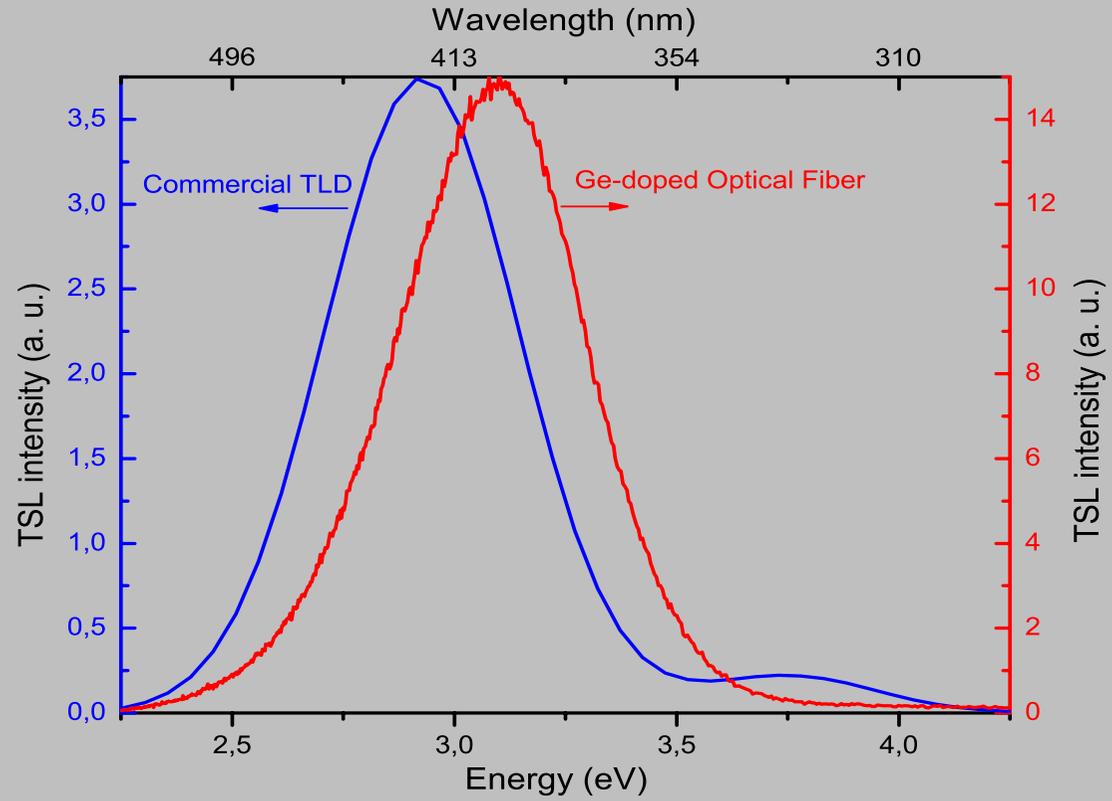


Peut être faire 2 diapos, une pour la RL et l'autre pour l'OSL

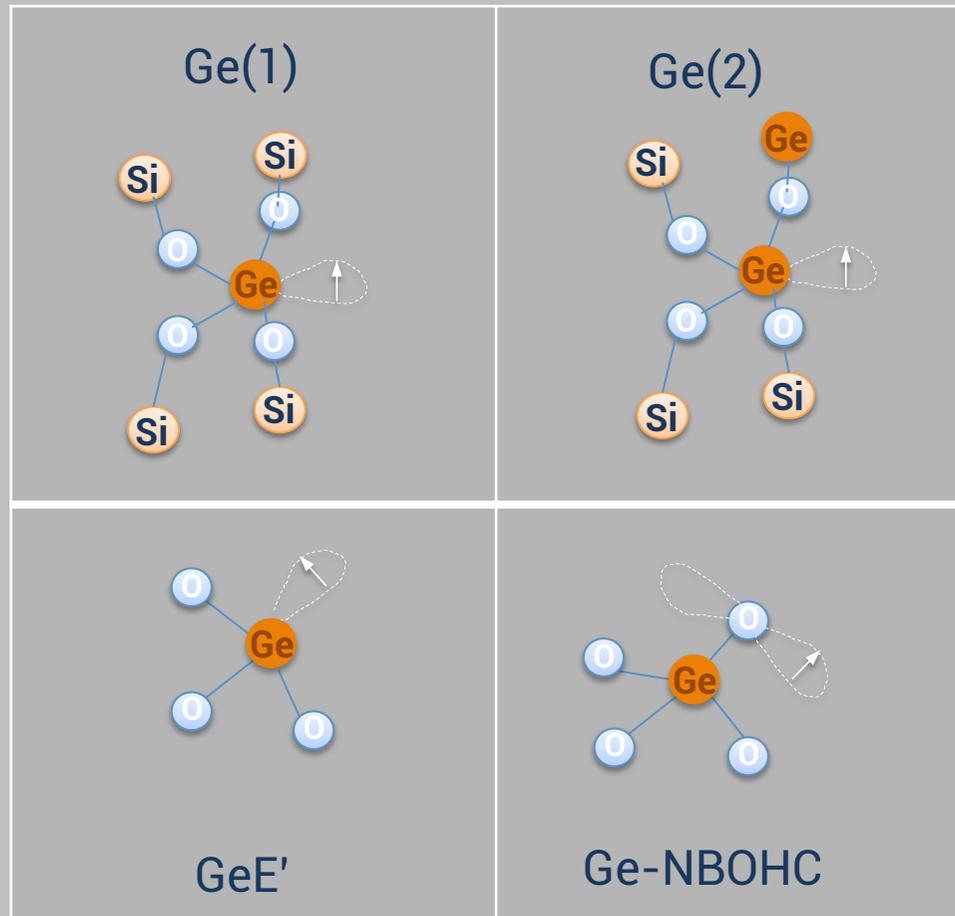
Le pic dosimétrique



Emission TL du pic dosimétrique

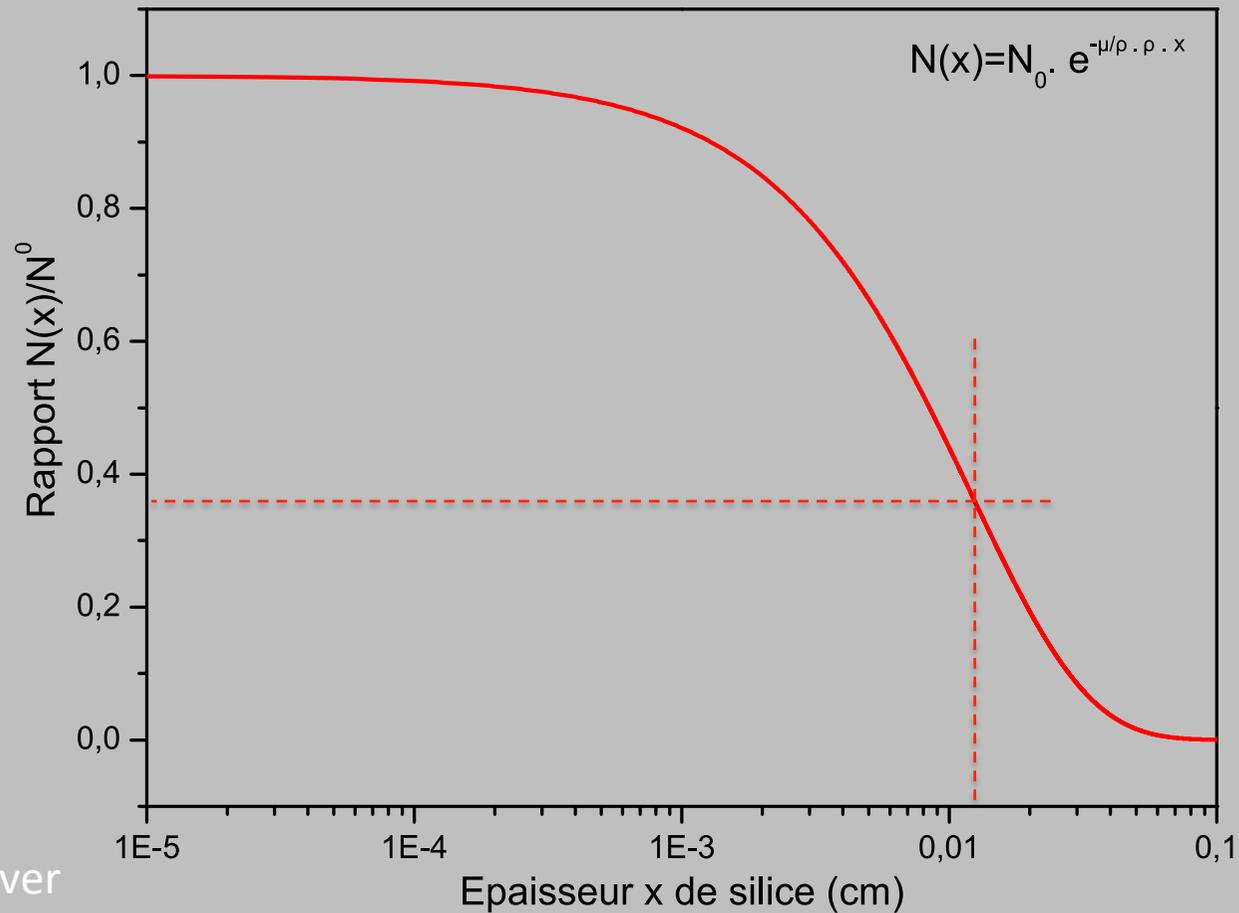


Défauts induits dans les germanosilicates



Les irradiations au LPMC

Générateurs X (anticathode en Cu - 45 kV, raies K_{α} et K_{β} à 8 et 8,9 keV) - Inel



Le génex
Ou l'enlever

Courbe d'atténuation des RX dans la silice

Conditions d'utilisation

Dosimètre	Origine	Forme	Pic TL (K)	λ_{\max} (nm)	<i>N° atomique effectif</i> Z_{eff}
$Al_2O_3:C$ (TLD500)	/	/	/	/	11,3
Fibres GeD_i	/	/	/	/	11,9 – 13,4
LiF: Mg, Ti (TLD700)	/	/	/	/	8,3

Tissus mous ont $Z_{eff} = 7,4$

TLD500 et fibres GeD_i ne sont pas équivalent-tissu mais $CaSO_4$: 15,6 et les sulfures de Mg, Ca et Sr: Ce, Sm ont $Z_{eff} = 14,6; 18,5$ et 34,6

A titre d'exemple, à Fukushima, en avril 2015, 4 ans après la catastrophe, la dose mesurée à l'intérieur de l'enceinte de confinement primaire du réacteur 1, atteint des niveaux conséquents avec des débits de dose allant de 0,7 à 0,97 krad/h empêchant tout accès humain.

Pour intervenir dans ces conditions extrêmes, il faut utiliser des robots ou des bras articulés télé-opérés équipés de capteurs d'images qui doivent résister à ces très fortes contraintes radiatives.

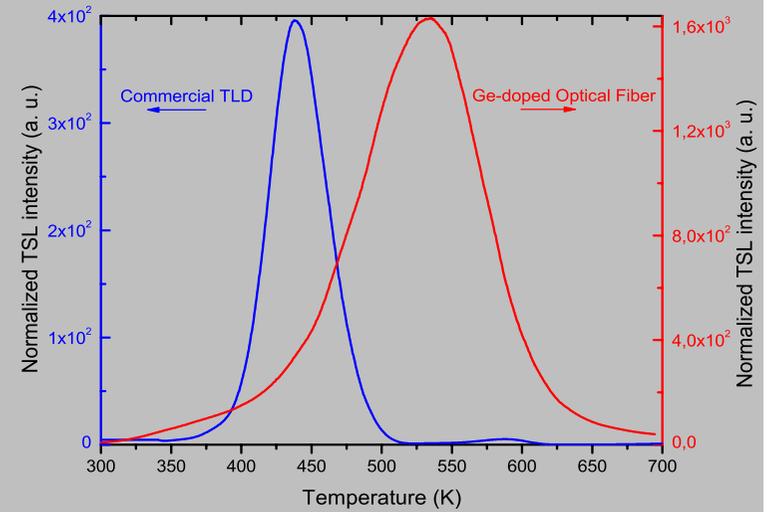
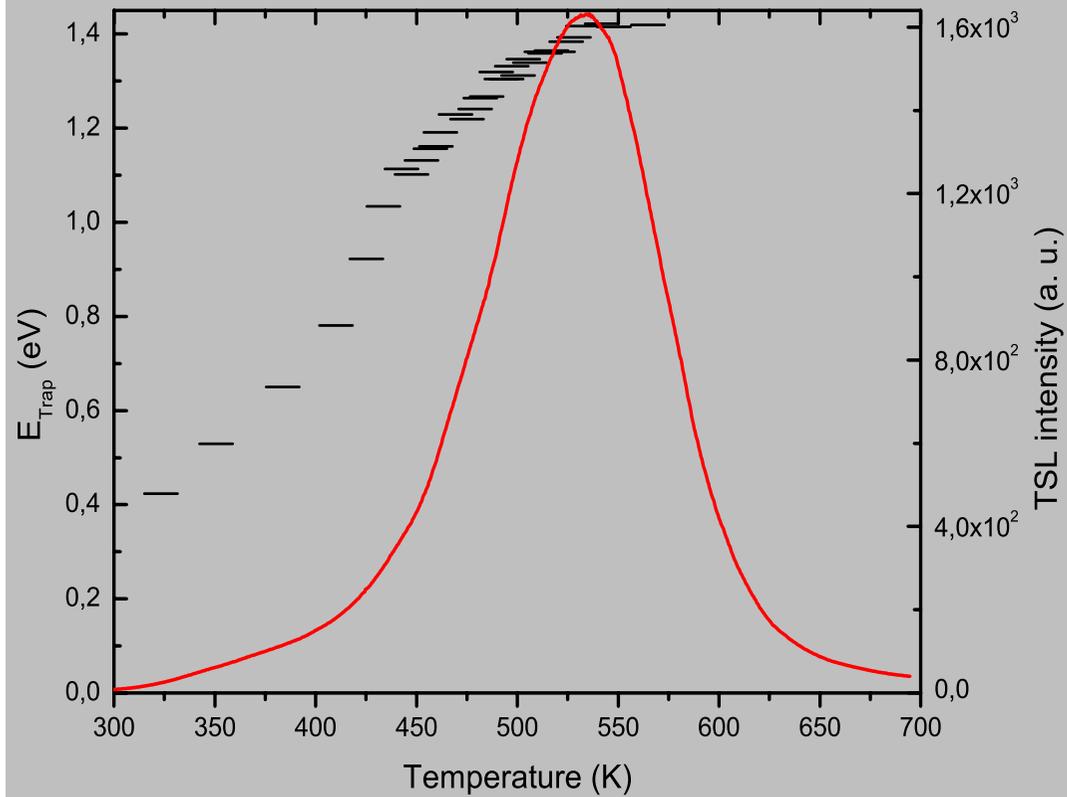
La fibre aura un rôle à jouer incontestablement (projet DISCARD)

L'interaction rayonnement – matière

Les défauts induits dépendent d'abord du type de radiation:

- les rayons X et γ : traversent \approx cm – effets électroniques
- les e^- : profondeurs \approx mm - effets électroniques
- les particules chargées: prof. \approx μ m - dommages importants, d'ordre électronique
- les neutrons rapides: prof. \approx cm – déplacements électroniques et nucléaires

Analyse du pic TL



$\Delta T = 138 \text{ K}$: typique de structure amorphe

Pic dosimétrique: énergie d'activation $E \approx 1,4 \pm 0,1 \text{ eV}$