

NORGE



**STYRET
FOR DET INDUSTRIELLE
RETTSVERN**

Utlegningskrift nr. 120597

Int. Cl. C 03 c 3/24 Kl. 32b-3/24

Patentsøknad nr. 3253/68 Inngitt 19.VIII 1968

Løpedag -

Søknaden alment tilgjengelig fra 25.II 1969

Søknaden utlagt og utlegningskrift utgitt 9.XI 1970

Prioritet begjært fra: 24.VIII 1967 Frankrike,
nr. 118.936

Commissariat à l'Energie Atomique,
29, rue de la Fédération, Paris 15, Frankrike.

Oppfinnere: Serge Carpentier, 18, rue du Docteur Plichon,
94, Creteil, Anne Marie Chapuis, f. Ramos,
4, avenue R. Croland, 92, Fontenay aux Roses,
Roger Delarue, 24, rue Daubigny, 75, Paris 17 og
Henri François, 18, rue de Lécluse, 75, Paris 17,
Frankrike.

Fullmektig: Siv.ing. Per Onsager.

Glass på basis av metafosfater og bestemt for
dosimetre for röntgenstråler, gammastråler og
termiske neutronstråler.

Den foreliggende oppfinnelse angår glass som er fremstilt
på basis av metafosfater og bestemt for dosimetre, og hvis følsomhet
for termiske neutroner lar seg innstille.

Der er kjent metafosfatglass som benyttes som følsomt
element i röntgen- og gamma-stråledosimetre, hvis fluorescens det
er mulig å måle straks etter bestråling, og som dessuten gjør det mu-
lig å måle små doser. Disse glass, som er beskrevet i norsk patent-
skrift nr. 106.046, har vektandeler av metafosfater mellom de følgende
grenser:

Kfr. kl. 32b-3/16

120597

2

LiPO_3	8,6 - 44,2%	
$\text{Be}(\text{PO}_3)_2$	8,7 - 44,1%	
NaPO_3	0 - 25 %	
$\text{Al}(\text{PO}_3)_3$	4,7 - 44 %	
AgPO_3	2,5 - 15 %	(Oppskrift A).

Man har laget et glass av denne type og av spesielt tilfredsstillende kvalitet når det gjelder reaksjonen på röntgen- og gamma-strålinger. Dette har følgende sammensetning:

LiPO_3	31,2 %	
$\text{Be}(\text{PO}_3)_2$	9,4 %	
NaPO_3	20,8 %	
$\text{Al}(\text{PO}_3)_3$	34,4 %	
AgPO_3	4,2 %	(Oppskrift B).

Dessuten har dette glass fordelene av å være meget lettvinnt å fremstille.

Ennvidere har sammensetningen av glass med de samme bestanddeler og med bestemt følsomhet for termiske neutroner vært studert. Man har fastslått at denne følsomhet avhenger av forholdet mellom innholdet av beryllium-metafosfat og litium-metafosfat. Den minker når innholdet av litium-metafosfat avtar, og blir minimal når dette innhold blir 0.

Glass av denne karakter er beskrevet i norsk patentskrift nr. 111.233.

De skal ha en sammensetning av vektandeler mellom følgende grenser:

Li_2O	0 - 1,5 %	
BeO	5 - 15 %	
Na_2O	0,1 - 10 %	
Al_2O_3	0,1 - 10 %	
Ag_2O	1,5 - 10 %	
P_2O_5	71,8 - 80,6 %	(oppskrift C).

Spesielt har man laget glass som betegnes som "balansert" og har samme følsomhet for termiske neutronstråler og for gammastråler. Dette glass har følgende sammensetning :

LiPO_3	9 %	
$\text{Be}(\text{PO}_3)_2$	31,6%	
NaPO_3	20,8%	
$\text{Al}(\text{PO}_3)_3$	34,4%	
AgPO_3	4,2%	(Oppskrift D).

Glass med denne sammensetning, som har funnet industriell anvendelse, gir likeverdig reaksjon på en rem av röntgen- og gammastråling og en rem av termisk neutronstråling, d.v.s. at en eneste avlesning i tilfellet av en blandet strålingsfluks gir opplysning om den samlede mottatte dose:

Röntgen- og gamma-stråling + termisk neutronstråling.

Uheldigvis er glass i henhold til oppskriftene C og D, hvis følsomhet kan reguleres, og spesielt de med balansert følsomhet, på grunn av sitt høye innhold av beryllium vanskelige å forarbeide i motsetning til glass i henhold til de første omtalte oppskrifter A og B.

Den foreliggende oppfinnelse går ut på et glass hvis følsomhet for termiske neutroner lar seg bestemme, og spesielt et glass som har balansert følsomhet, uten at glasset har den nevnte ulempe.

Et glass for dosimetre for röntgen- og gammastrålinger og termiske neutronstrålinger samt fremstilt på basis av oksygenforbindelser av fosfor og aktivert med sølv i henhold til den foreliggende oppfinnelse svarer stort sett til den allerede angitte sammensetning for det først omtalte dosimeterglass ifølge oppskrift A. Man vet at isotopen 6 av litium har et betraktelig innfangningstverrsnitt for termiske neutroner, adskillig høyere enn det for isotop 7. Ifølge oppfinnelsen minsker man glassets følsomhet for termiske neutroner ved å senke den relative andel av isotop 6 av litium i forhold til andelen av isotop 7. Spesielt kan man utbalansere følsomheten for termiske neutronstrålinger likeoverfor følsomheten for röntgen- og gamma-strålinger.

Forat fremstillingen av disse glass skal bli lønnsom, er det nødvendig å anvende blandinger av litiumisotoper som man forholdsvis lett kan skaffe seg. Med sikte på dette foretrekkes det å benytte en blanding av naturlig litium med litium som er sterkt anriket på isotop 7.

Ved en foretrukken utførelsesform av oppfinnelsen ligger innholdet av sølv-metafosfat AgPO_3 innen rammen av den ovennevnte oppskrift A, og man får dermed et glass hvor stabiliseringen efter bestråling inntreffer meget raskt. Ved en annen utførelsesform benytter man et innhold av AgPO_3 mellom 0,1 og 2,4%. Den tilsvarende sammensetning har fordelen av et lavere midlere atomnummer. Men til gjengjeld stabiliserer det glass man får, seg bare meget langsomt ved omgivelsestemperaturen. Man kan påskynde stabiliseringen ved å la

glasset passere et varmekammer, men man må da ta med på kjøpet en komplikasjon og en spredning av resultatene som gjør denne løsning lite anbefalelsesverdig.

Forat den foreliggende oppfinnelse og dens forskjellige tekniske fordeler bedre skal forstås, vil der bli beskrevet et utførelseseksempel, skjönt det vil forstås at dette på ingen måte betyr noen begrensning når det gjelder mulige utførelsesformer og anvendelser.

Det vil først bli beskrevet hvordan man bestemmer sammensetningen av et balansert glass som er lett vint å produsere.

Prosentandelen P_{nat} av naturlig litium i glasset ifølge oppskrift B er:

$$P_{\text{nat}} = \frac{6,939 \text{ g} \times 31,2 \%}{85,909 \text{ g}} = 2,520 \%$$

hvor 6,939 g er vekten av gram-atomet av litium og 85,909 er vekten av et mol litium-metafosfat Li PO_3 , mens 31,2 % er prosentandelen av Li PO_3 .

Videre er prosentandelen av naturlig litium i det balanserte glass (oppskrift D):

$$P_{\text{nat}} = \frac{6,939 \text{ g} \times 9\%}{85,909 \text{ g}} = 0,726 \%$$

idet 9% er prosentandelen av litium-metafosfat Li PO_3 i det balanserte glass.

Under disse forhold er prosentandelen av litium-6:

$${}^6_{\text{Li}} = \frac{0,726 \times 7,42}{100} = 0,053 \%$$

når man tar hensyn til de respektive andeler av litium-6 og litium-7 i naturlig litium:

$$\begin{aligned} {}^6_{\text{Li}} &= 7,42 \% \\ {}^7_{\text{Li}} &= 92,58 \% \end{aligned}$$

For å overholde de allerede angitte betingelser:

- a) samme totale innhold av litium i det nye glass som i sammensetningen ifølge oppskrift B,

og

- b) samme innhold av litium-6 i det nye glass som i det balanserte glass (oppskrift D),

er det nødvendig å overholde de to følgende ligninger:

$$x + y = 2,520\% \quad (1)$$

$$0,0025 x + 0,0742 y = 0,053 \% \quad (2)$$

med en andel x av litium anriket til 99,75 % med isotopen litium-7

120597

og en andel y av naturlig litium, hvilket gir:

$$y = 0,665 \% \text{ (naturlig litium)}$$

$$x = 1,855 \% \text{ (anrikt litium).}$$

På dette grunnlag er det lyktes søkerne å realisere et glass hvis sammensetning av metafosfater er som for glasset ifølge oppskrift B, og som har en følsomhet for termiske neutronstråler identisk med følsomheten for röntgen- eller gammastråler. I dette glass er litiumets innhold av isotopen ^6Li 2,1 %.

Glass laget med denne nye balanserte sammensetning (oppskrift E) og det først fremstilte glass med balansert sammensetning (oppskrift D) har vært gjort til gjenstand for sammenlignende studier utført i en kjernereaktor.

Disse glass, montert i dosimetre, blev gjort til gjenstand for sammenlignende målinger. Glassene var nakne og blev dels neddykket i en borsyreoppløsning og dels ikke. Dosimetrene blev innført i kanalen i kjernereaktoren mot reaktorbeholderen og efter tur plasert foran og bak en grafittblokk.

Glassene blev utsatt for en termisk neutronfluks rettet mot reaktorbeholderen, på $9 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2$. På samme nivå var den anslåtte gammastrålingsdose av størrelsesordenen 100 rem/h.

De oppnådde resultater er angitt i den følgende tabell:

Glass	Plasering av lumino- dosimetrene	Avlesn. på nakne glass rem	Avlesn. på nakne glass rem	Forhold $R =$ $\frac{\text{Avl. glass E}}{\text{Avl. glass D}}$	Ansl. doser term. neutr. rem	$R =$ $\frac{\text{Avl. glass E}}{\text{Avl. glass D}}$
D	Foran blokk	82	17	$R = \frac{20}{17}$ $= 1,18$	65	$R_n = \frac{80}{65}$ $= 1,23$
E	Foran blokk	100	20		80	
D	Bak blokk	48	7	$R = \frac{8}{7}$ $= 1,14$	41	$R_n = \frac{47}{41}$ $= 1,14$
E	Bak blokk	55	8		47	

Dessuten har andre forsök, som blev utfört särskilt ved hjelp av en kobolt-60-kilde, vist at for en like stor dose av gammastråling alene er glass E 15 % mer følsomt enn glass D. Ennvidere har de vist at utgangsdosene er omtrent 15 % mindre.

Som konklusjon kan sies at hovedfordelene ved de nye glass er:

lett vint fremstilling,
øket følsomhet og
mindre utgangsdose.

P a t e n t k r a v :

1. Glass for dosimetre for röntgenstråling, gammastråling og termisk neutronstråling på basis av oksygenforbindelser av fosfor og aktivert med sølv samt inneholdende regnet i vekt:

0,1 - 44,2 % litium-metafosfat LiPO_3
8,7 - 44,1 % beryllium-metafosfat $\text{Be}(\text{PO}_3)_2$
0 - 25 % natrium-metafosfat NaPO_3
4,7 - 44 % aluminium-metafosfat $\text{Al}(\text{PO}_3)_3$
0,1 - 15 % sølv-metafosfat AgPO_3

k a r a k t e r i s e r t ved at det inneholdte litium er anrikt med isotopen litium-7 i forhold til naturlig litium.

2. Glass som angitt i krav 1, med en følsomhet for termiske neutronstrålinger lik den for röntgen- eller gamma-strålinger og med følgende sammensetning :

litium-metafosfat LiPO_3 31,2 %
beryllium-metafosfat $\text{Be}(\text{PO}_3)_2$ 9,4 %
natrium-metafosfat NaPO_3 20,8 %
aluminium-metafosfat $\text{Al}(\text{PO}_3)_3$ 34,4 %
sølv-metafosfat AgPO_3 4,2 %

k a r a k t e r i s e r t ved at innholdet av ^6Li i litumet er 2,1 %.

3. Glass som angitt i krav 2, k a r a k t e r i s e r t ved at de relative andeler av naturlig litium og litium anrikt til 99,75% med isotopen litium-7 er henholdsvis 0,665 og 1,855 %, regnet på glassets totale sammensetning.

Anførte publikasjoner:

U.S. patent nr. 2.999.819 (252-408)

2 artikler i Symposium on Personnel Dosimetry for Accidental High-Level Exposures to External and Internal Radiation, held jointly by the International Atomic Energy Agency and the WHO in Vienna 8.-12. March 1965.

1) SM 56/45 G.A.M. Webb: "The Measurement of Integrated Gamma-ray doses in the Range 50 mrad to 5 mrad using Phosphate Glass and Lithium Fluoride" side 165-166.

2) SM 56/35, H.François....., " Dosimètre Personnel a Fonctions Multiples Adapté à la Dosimétrie des Fortes Irradiations Accidentelles", side 325.