

СРАВНИТЕЛЬНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ДЕТЕКТОРНЫХ МАТЕРИАЛОВ НА ОСНОВЕ $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ ДЛЯ НЕЙТРОННОЙ ДОЗИМЕТРИИ

© 2024 г. Р.М. Абашев^{1,*}, А.И. Бояринцев^{1,**}, И.И. Мильман^{1,***}, А.Д. Петракович^{1,****},
А.И. Сурдо^{1,*****}

¹Институт физики металлов УрО РАН,
Россия 620077 Екатеринбург, ул. Софьи Ковалевской, 18
E-mail: *abashevrm@imp.uran.ru; **a.i.boyarincev@imp.uran.ru; ***milman@imp.uran.ru;
****petrakovich2007.an@yandex.ru; *****surdo@imp.uran.ru

Поступила в редакцию 30.05.2024; после доработки 07.06.2024
Принята к публикации 07.06.2024

Исследованы оптически стимулированная люминесценция (ОСЛ) и эффективность разделения по ОСЛ-выходам нейтронного и гамма-компонентов у образцов аниодефицитного корунда ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$) в керамической и монокристаллической формах с различными нейтронными конверторами. Для ОСЛ-дозиметрии в смешанных гамма-нейтронных полях в качестве перспективного выбран синтезированный по керамической технологии детекторный материал, состоящий из смеси порошков ОСЛ-активного $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ и нейтрон-конверторного ^6LiF в пропорции 7:3. Нижняя граница индивидуального эквивалента дозы у такого материала при нейтронном облучении не превышает 30 мкЗв, а дозовая зависимость линейна до 1 Зв.

Ключевые слова: индивидуальный дозиметрический контроль, нейтронная дозиметрия, дозиметрическая система КОРОС-333, оптически стимулированная люминесценция, аниодефицитный корунд.

COMPARATIVE CHARACTERISTICS OF LUMINESCENT DETECTOR MATERIALS BASED ON $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ FOR NEUTRON DOSIMETRY

© 2024 R. M. Abashev^{1,*}, A. I. Boyarincev^{1,**}, I. I. Milman^{1,***}, A.D. Petrakovich^{1,****},
A.I. Surdo^{1,*****}

¹Mikheev Institute of Metal Physics, Ural Branch, Russian Academy of Sciences,
Russia 620108 Yekaterinburg, S. Kovalevskaya str., 18
E-mail: *abashevrm@imp.uran.ru; **a.i.boyarincev@imp.uran.ru; ***milman@imp.uran.ru;
****petrakovich2007.an@yandex.ru; *****surdo@imp.uran.ru

The optically stimulated luminescence (OSL) and the separation efficiency of the neutron and gamma components by OSL outputs were studied for samples of anion-deficient corundum ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$) in ceramic and single-crystal forms with various neutron converters. For OSL dosimetry in mixed gamma-neutron fields, a detector material synthesized using ceramic technology consisting of a mixture of OSL active $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ and neutron-converter ^6LiF powders in a ratio of 7:3 was selected as a promising one. The lower limit of the individual dose equivalent for such material under neutron irradiation does not exceed 30 μSv , and the dose dependence is linear up to 1 Sv.

Keywords: individual dosimetric control, neutron dosimetry, dosimetric system COROS-333, optically stimulated luminescence, anion-defective corundum.

DOI: 10.31857/S0130308224070064

ВВЕДЕНИЕ

Альбедные нейтронные дозиметры являются обязательным элементом в системах индивидуального дозиметрического контроля, применяемых на предприятиях ГК «Росатом». С их помощью и термолюминесцентного (ТЛ) способа считывания дозиметрической информации измеряют индивидуальные эквиваленты доз (ИЭД) $H_p(10)$ в смешанных гамма-нейтронных полях. Одной из проблем, возникающих при разработке таких дозиметров, является ограниченное количество типов детекторов и материалов для них, которые могут быть применены для измерения $H_p(10)$ [1, 2]. Наиболее часто для разделения вкладов в $H_p(10)$ нейтронного и гамма-компонентов используют ТЛ-детекторы на основе ^6LiF и ^7LiF [2]. Такой подход не реализуем, если для считывания используется эффект оптически стимулированной люминесценции (ОСЛ).

Один из вариантов решения задачи, связанной с разработкой альбедных нейтронных ОСЛ-дозиметров, продемонстрирован в [3], где в качестве ОСЛ-активного материала использован аниодефицитный корунд ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$). В [3] показано, что применяя скомпактированную в пленку смесь порошков ОСЛ-активного $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ и нейтрон-конверторного $^6\text{Li}_2\text{CO}_3$, можно соз-

дать нейтронно-чувствительные ОСЛ-детекторы. Однако такая форма детекторов не применима для разработанной нами ОСЛ-системы КОРОС-333 [4] из-за конструктивных особенностей используемых дозиметров, в составе которых ОСЛ-детекторы имеют вид дисков размером $\varnothing 5 \times 1$ мм.

Поэтому целью работы являлись разработка высокочувствительного скомпактированного в виде таблеток детекторного материала на основе $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ для альбедных нейтронных ОСЛ-дозиметров и исследование у него дозовых характеристик.

ОБЪЕКТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ, СПОСОБЫ ИХ ОБРАБОТКИ, СРЕДСТВА И МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЙ

При выборе оптимального состава для нейтронно-чувствительного ОСЛ-детектора исследовались ОСЛ-выходы у образцов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ в керамической (размер зерен — 80—100 мкм) и монокристаллической формах с различными нейтронными конверторами и их расположением. Для таких конверторов были выбраны четыре материала. Два из них были выполнены из ${}^6\text{LiF}$ и ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$, в которых изотоп ${}^6\text{Li}$ при захвате нейтрона будет распадаться на тритий и α -частицу с энергиями соответственно 2,75 и 2,05 МэВ. Пробеги трития и α -частицы в $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ не превышают соответственно 30 и 4 мкм [5]. Из-за малых пробегов указанных частиц образцы изготавливались из гомогенизированных смесей порошков $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ и ${}^6\text{LiF}$ либо $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ и ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ в пропорции 7:3 с последующим компактированием в таблетки диаметром 5 мм и толщиной от 0,15 до 0,5 мм и их спеканием при 850—950 К. Размер частиц порошков ${}^6\text{LiF}$ и ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ не превышал 20 мкм. В третьем и четвертом вариантах нейтроны конвертировались в гамма-излучение, которое регистрировалось стандартным монокристаллическим ОСЛ-детектором на основе $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ размером 51 мм. В качестве одного из конверторов использовалась кадмиевая пластинка $10 \times 13 \times 0,2$ мм, а в другом — диск $\varnothing 10 \times 0,9$ мм из компактированного порошка Gd_2O_3 .

Исследуемые образцы облучались на специальном фантоме в поле Pu—Be -источника с потоком быстрых нейтронов $2,12 \times 10^6 \text{ с}^{-1}$ в телесный угол $4\pi \times \text{ср}$. Фантом был изготовлен в виде параллелепипеда из чистого полиэтилена размером $30 \times 30 \times 15$ см. При данных условиях значения индивидуальных эквивалентов доз для нейтронного и гамма-компонентов определялись с помощью стандартного альбедного термолюминесцентного дозиметра ДВНГ-М при времени его облучения 24 ч и составили соответственно 44,3 и 0,7 мЗв. Изготовленные из порошков образцы также облучались бета-излучением от ${}^{90}\text{Sr}/{}^{90}\text{Y}$ -источника для подбора их оптимальной толщины, при которой ОСЛ-выходы были бы максимальны.

Все ОСЛ-данные были получены с помощью системы КОРОС-333. Измеренный ОСЛ-сигнал S_{OSL} у исследуемых детекторных материалов, облученных в поле Pu—Be -источника, представляет собой сумму двух компонентов, обусловленных облучением нейтронным (S_{OSL_N}) и гамма-излучением (S_{OSL_γ}). Для точной оценки вклада S_{OSL_γ} в высвеченную светосумму S_{OSL} использовались практически нечувствительные к нейтронам ОСЛ-детекторы на основе $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ [6]. Величина S_{OSL_N} определялась как

$$S_{\text{OSL}_N} = S_{\text{OSL}} - S_{\text{OSL}_\gamma}. \quad (1)$$

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Используя (1), были определены компоненты светосумм S_{OSL_γ} и S_{OSL_N} , а затем эффективность разделения нейтронного и гамма-компонента R_N/R_γ . Величина R_N/R_γ вычислялась как нормированное на соответствующие ИЭД (D_N и D_γ):

$$\frac{R_N}{R_\gamma} = \frac{S_{\text{OSL}_N}/D_N}{S_{\text{OSL}_\gamma}/D_\gamma}, \quad (2)$$

где D_N и D_γ — нейтронный и гамма-компоненты ИЭД. Для каждого из детекторных составов значения D_N , D_γ и суммарный ИЭД смешанного гамма-нейтронного облучения $H_p(10) = D_N + D_\gamma$ составляли соответственно 44,3, 0,7 и 45 мЗв.

Полученные результаты измерений и расчетов суммированы в табл. 1. Как видно, наибольшие значения S_{OSL_N}/D_N и соотношения R_N/R_γ имеет детекторный состав из $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ и ${}^6\text{LiF}$. Состав из $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_{3-\delta}$ и ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ обладает близким к первому составу соотношением R_N/R_γ , но крайне слабыми ОСЛ-выходами S_{OSL_N} и S_{OSL_γ} из-за его низкой оптической прозрачности, что

Таблица 1

Значения $S_{OSL,N}/D_N$, $S_{OSL,\gamma}/D_\gamma$ и R_N/R_γ для исследуемых сочетаний ОСЛ-активного материала и конвертора при $D_N = 44,3$ мЗв и $D_\gamma = 0,7$ мЗв

ОСЛ-материал / конвертор	$S_{OSL,N}/D_N$, мЗв ⁻¹	$S_{OSL,\gamma}/D_\gamma$, мЗв ⁻¹	R_N/R_γ
α -Al ₂ O _{3-δ} (порошок) / ⁶ LiF	1793	2109	0,85
α -Al ₂ O _{3-δ} (порошок) / ⁶ Li ₂ CO ₃	184	245	0,75
α -Al ₂ O _{3-δ} (монокристалл) / Gd ₂ O ₃	275	55056	0,005
α -Al ₂ O _{3-δ} (монокристалл) / Cd	1194	85309	0,014

препятствует прохождению через него стимулирующего излучения и полезного ОСЛ-сигнала. Кроме того, отличительной особенностью состава из α -Al₂O_{3-δ} и ⁶Li₂CO₃ являлась плохая спекаемость. У детекторных составов с конверторами из Gd₂O₃ и Cd получено малое отношение R_N/R_γ , и поэтому они не могут эффективно разделять вклады в индивидуальный эквивалент дозы от нейтронного и гамма-компонентов.

Немаловажным фактором, влияющим на ОСЛ-выход детекторных поликристаллических материалов, является их толщина (d). Так, с одной стороны, ее увеличение должно приводить к возрастанию ОСЛ-выхода вследствие повышения массы ОСЛ-активного материала α -Al₂O_{3-δ}. С другой стороны, при росте толщины будет снижаться прозрачность и, как следствие, ОСЛ-выход исследуемых образцов за счет поглощения и рассеяния в их объеме стимулирующего ОСЛ излучения и измеряемого ОСЛ-сигнала. Поэтому для образцов, изготовленных из α -Al₂O_{3-δ} и ⁶LiF в пропорции 7:3 и обладающих оптимальным сочетанием $S_{OSL,N}/D_N$, $S_{OSL,\gamma}/D_\gamma$ и R_N/R_γ (см. табл. 1), была изучена зависимость ОСЛ-выхода S_{OSL} от толщины образцов d , облученных бета-излучением ⁹⁰Sr/⁹⁰Y-источника дозой 8 мГр (рис. 1а). Из полученных данных следует, что оптимальная толщина для изучаемых компактированных детекторных составов находится в диапазоне 350—450 мкм с максимумом вблизи 430 мкм.

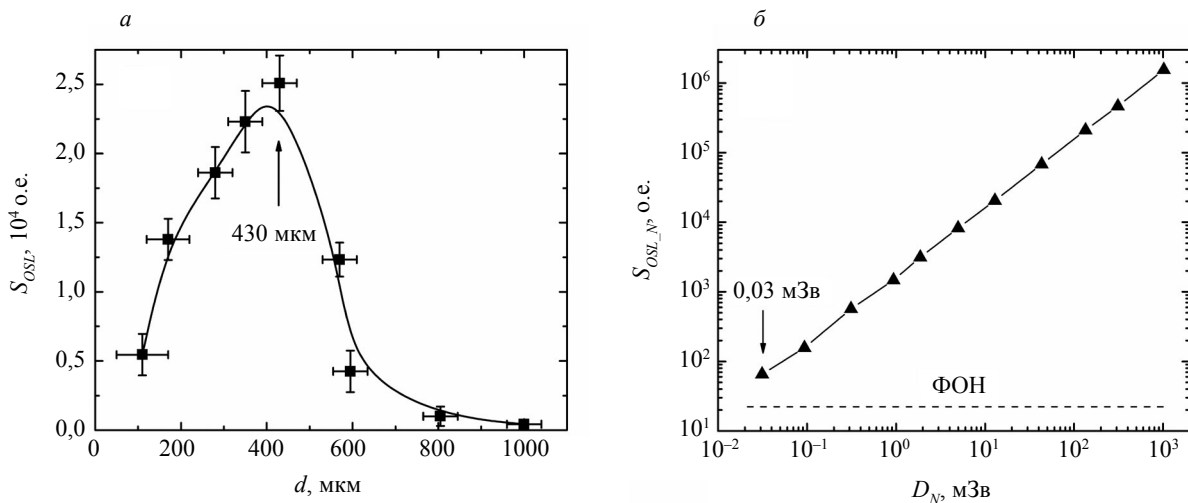


Рис. 1. Зависимости S_{OSL} от толщины d для образцов из α -Al₂O_{3-δ} и ⁶LiF (а) и $S_{OSL,N}$ от дозы D_N их нейтронного облучения в поле Pu—Ве-источника при $d = 430$ мкм (б).

Учитывая полученные выше результаты, далее была изучена зависимость ОСЛ-выхода $S_{OSL,N}$ у образцов из α -Al₂O_{3-δ} и ⁶LiF с $d = 430$ мкм от дозы нейтронного облучения D_N в Pu—Ве-источнике (рис. 1б). Видно, что при таком облучении зависимость $S_{OSL,N}(D_N)$, представленная в двойных логарифмических координатах, близка к линейной в диапазоне доз 0,03—1000 мЗв. Ее можно описать уравнением вида $\lg S_{OSL,N} = \lg A + k \cdot \lg D_N$, где A и k — калибровочный и дозовый коэффициенты соответственно. При такой аппроксимации $S_{OSL,N}(D_N)$ получено, что $A = 1700 \pm 50$ и $k = 0,99 \pm 0,01$. Из анализа зависимости $S_{OSL,N}(D_N)$ также следует, что нижняя граница индивидуального эквивалента дозы при нейтронном облучении образцов из смеси α -Al₂O_{3-δ} и ⁶LiF с $d = 430$ мкм не превышает 0,03 мЗв или

30 мкЗв, что в 3,3 раза меньше требуемой нормативными документами ГК «Росатом» [7]. Однако у полученной зависимости $S_{OSL,N}(D_N)$ пока не достигнута область насыщения, что требует облучения в течение не менее полугода либо использования более мощного Pu—Be-источника.

ВЫВОДЫ

1. Для нейтронной ОСЛ-дозиметрии в смешанных гамма-нейтронных полях разработан высокочувствительный детекторный керамический материал, изготовленный по описанной технологии из смеси ОСЛ-активного порошка α - Al_2O_3 и порошка ${}^6\text{LiF}$, являющегося нейтронным конвертором.

2. Нижняя граница индивидуального эквивалента дозы у такого материала при нейтронном облучении составляет 30 мкЗв, и ее величина меньше в 2-3 раза аналогичной, чем у ТЛ-дозиметров, применяемых на предприятиях ГК «Росатом».

3. При использовании конверторов из Gd_2O_3 и Cd получено малое соотношение R_N/R_γ , и поэтому ОСЛ-дозиметры на основе α - Al_2O_3 с такими конверторами не могут эффективно разделять вклады в индивидуальный эквивалент дозы от нейтронного и гамма-компонентов.

Работа выполнена в рамках государственного задания МИНОБРНАУКИ России (тема «Диагностика», № 122021000030-1).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Piesch E., Burckhardt B.* Albedo Neutron Dosimetry // Radiation protection dosimetry. 1985. V. 10. No. 1-4. P. 175—1985.
2. *Piesch E.* Albedo Neutron Dosimetry // The International Journal of Applied Radiation and Isotopes. 1982. V. 33. P. 1061—1076.
3. *Yukihara E., Mittani J., Vanhavere F., Akselrod M.* Development of new optically stimulated luminescence (OSL) neutron dosimeters // Radiation Measurements. 2008. V. 43. P. 309—314.
4. *Сурдо А.И., Абашев Р.М., Красноперов В.С., Мильман И.И., Моисейкин Е.В., Бояринцев А.И.* Автоматизированная система индивидуального дозиметрического контроля КОРОС-333 // Дефектоскопия. 2023. № 6. С. 73 — 74.
5. *Van Eijk C. W. E.* Neutron detection and neutron dosimetry // Radiation protection dosimetry. 2004. V. 110. No. 1-4. P. 5—13.
6. *Gibson J.A.B.* The Relative Tissue Kerma Sensitivity of Thermoluminescent Materials to Neutrons // Radiation Protection Dosimetry. 1986. V. 15. No. 4. P. 253—266.
7. СТО 1.1.1.01.001.0877-2020. Автоматизированная система индивидуального дозиметрического контроля атомных электростанций. Технические требования, 2020.

REFERENCES

1. *Piesch E., Burckhardt B.* Albedo Neutron Dosimetry // Radiation protection dosimetry. 1985. V. 10. No. 1-4. P. 175—1985.
2. *Piesch E.* Albedo Neutron Dosimetry // The International Journal of Applied Radiation and Isotopes. 1982. V. 33. P. 1061—1076.
3. *Yukihara E., Mittani J., Vanhavere F., Akselrod M.* Development of new optically stimulated luminescence (OSL) neutron dosimeters // Radiation Measurements. 2008. V. 43. P. 309—314.
4. *Surdo A.I., Abashev R.M., Krasnoperov V.S., Milman I.I., Moiseikin E.V., Boyarintsev A.I.* Automatic system of individual dosimetric control COROS-333 // Defektoskopia. 2023. No. 6. P. 73—74. (In Russia).
5. *Van Eijk C. W. E.* Neutron detection and neutron dosimetry // Radiation protection dosimetry. 2004. V. 110. No. 1-4. P. 5—13.
6. *Gibson J.A.B.* The Relative Tissue Kerma Sensitivity of Thermoluminescent Materials to Neutrons // Radiation Protection Dosimetry. 1986. V. 15. No. 4. P. 253—266.
7. STO 1.1.1.01.001.0877-2020. Equipment of an automated system for individual monitoring of a nuclear power plant. Technical requirements of the operating organization, 2020.