

УДК 535.377;546.05;539.1.074.9

РАЗРАБОТКА ТЕХНОЛОГИЙ И ИССЛЕДОВАНИЕ ФУНКЦИОНАЛЬНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ДЕТЕКТОРОВ РАЗЛИЧНЫХ ТИПОВ

Мосягина И.В., Ивкина О.В., Шарипова М.А. (АО «СНИИП», г. Москва)

e-mail: irvmosyagina@sniip.ru

Разработка устройств индивидуального дозового контроля в последнее время приобретает особую актуальность в связи с импортной зависимостью в части как детектирующих материалов (термолюминесцентных детекторов ТЛД), так и в системах считывания и обработки информации. В настоящее время в нашей стране в промышленном масштабе разработаны технологии получения монокристаллических ТЛД состава Al_2O_3 и $LiF:Mg,Ti$ на основе природной смеси изотопов лития, а также обогащением 6Li , 7Li . Указанные монокристаллы имеют широкий диапазон чувствительности, относительно низкие фединг и собственный фон [1, 2]. Однако технология получения монокристаллических ТЛД имеет недостатки, в том числе продолжительную длительность и низкую вариативность состава материала. Альтернативой монокристаллическим ТЛД являются детекторы на основе поликристаллических (порошковых) люминофоров разного состава ($MgB_4O_7:Dy$, $LiF:Mg,Ti$ и др.). Однако отечественные технологии синтеза порошковых термолюминофоров в большинстве утеряны, в наиболее распространенных системах индивидуального дозового контроля импортного производства используются поликристаллические ТЛД [3, 4].

Акцент на порошковые материалы выбран в том числе вследствие недостатков технологий выращивания монокристаллических материалов и последующего изготовления ТЛД:

химическая неоднородность выращиваемых кристаллов в виде монотонного изменения их состава вдоль направления роста;

риск загрязнения расплава примесями из разогреваемого контейнера;

необходимость сортировки ТЛД по партиям в соответствии с полученным составом;

большие технологические отходы при изготовлении ТЛД из монокристалла методом скалывания;

длительность процесса 1—2 мес изготовления монокристалла и ТЛД;

высокий риск накопления радиационно-индуцированных дефектов в объеме монокристалла [5].

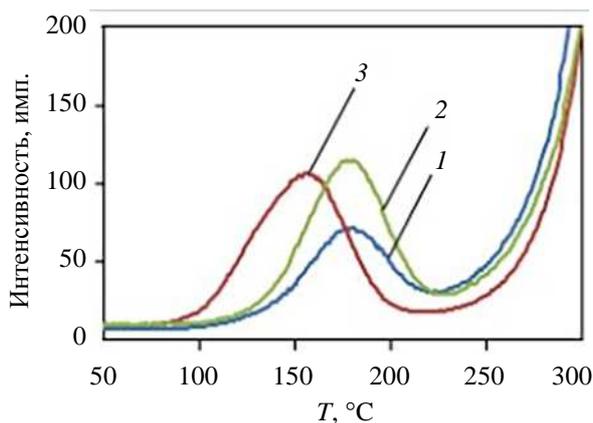
Для регистрации фотонного и β -излучения к разработке выбраны поликристаллические $LiF:Mg,Ti$ (ТЛД-100), $MgB_4O_7:Dy$ (ТЛД-580К), $MgB_4O_7:Dy,Na$ (ТЛД-580Н) и $MgB_4O_7:Dy,Li$ (ТЛД-580Л). Для регистрации нейтронного излучения разрабатываются процессы синтеза порошка термолюминофора состава $^6LiF:Mg,Ti$ (ТЛД-600).

Однако в настоящее время не решена проблема дефицита изотопной продукции 6Li , и, как следствие, было принято решение о поиске принципиально нового термолюминофора для детектирования тепловых нейтронов. Одними из возможных являются соединения гадолиния. В АО «СНИИП» разработаны процессы синтеза ТЛД состава $MgB_4O_7:Gd,Na$, которые получили условное наименование ТЛД-GN.

В 2019 г. разработана и внедрена в производство технология синтеза порошкового термолюминофора для β -, γ -дозиметрии $MgB_4O_7:Dy$. По сравнению с материалом предыдущего поколения характеристики улучшены в 2—3 раза (см. таблицу). Проведен комплекс типовых испытаний, изделия приняты к поставкам на объекты МО РФ.

Характеристики синтезированного в АО «СНИИП» термолюминофора $MgB_4O_7:Dy$ и материала предыдущего поколения

Характеристика	ТЛД из люминофора предыдущего поколения	Партия ТЛД из люминофора АО «СНИИП»
Однородность партии, %	15,77	6,06
Собственный фон, мГр	9,75	4,8
Линейность, %	13,06	6,67
Коэффициент вариации, %	5,2	1,87
Фединг, отн. ед. в год	0,32	0,08
Воздействие света (сут) на показания (фон) детектора, отн. ед.	6,1	1,37
Воздействие света (7 сут) на чувствительность одного детектора, отн. ед.	0,04	0,07



Р и с. 1. Термовысвечивание образцов ТЛД состава $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy}$ (1), $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy,Na}$ (2), $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy,Li}$ (3)

Как показано в работах [6, 7], вторичное допирование ионами щелочных металлов благоприятно отражается на чувствительности люминофора. Были выполнены комплексные исследования по разработке эффективной технологии вторичного допирования $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy}$ ионами лития и натрия.

На рис. 1 показано термовысвечивание образцов ТЛД трех составов. Предварительно образцы облучали ^{137}Cs с обеспечением индивидуальной эквивалентной дозы 10 мЗв. При снятии термокривых скорость нагрева образца составляла $1^\circ\text{C}/\text{с}$.

Результатом вторичного допирования ионами щелочных металлов стало 1,5—2-кратное увеличение интенсивности люминесценции люминофора. В дальнейшем ожидается подтверждение расширения диапазона регистрации для $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy,Li/Na}$ по сравнению с $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy}$.

Наиболее распространенным за рубежом термолюминофором является ТЛД-100 состава $\text{LiF}:\text{Mg,Ti}$. Отмечается, что его диапазон регистрации намного шире, чем тетрабората магния. В нашей стране получили распространение монокристаллические материалы, в АО «СНИИП» акцент сделан на технологию получения поликристаллического ТЛД-100. В области регистрации нейтронов отдельное внимание было уделено влиянию металлической подложки, используемой при изготовлении ТЛД методом импрегнации. Для исключения паразитного фонового излучения были разработаны пресс-формы и апробирован метод горячего прессования порошкового термолюминофора (рис. 2). Для регистрации нейтронного излучения были также



а



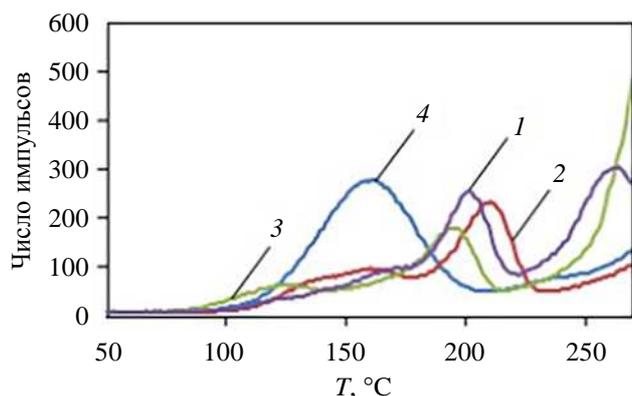
б

Р и с. 2. Пресс-формы (а) для изготовления ТЛД методом горячего прессования и полученные ТЛД (б)

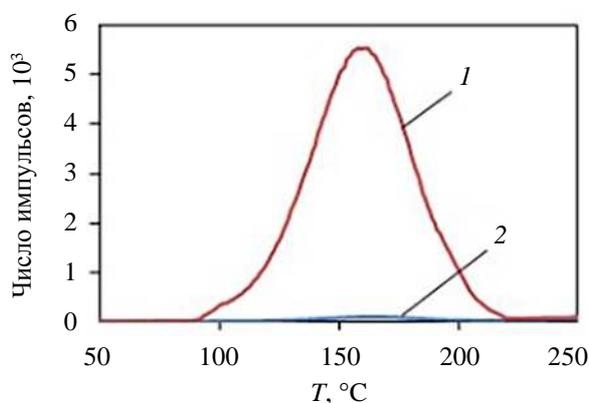
изготовлены образцы на основе обогащенного ^6Li (ТЛД-600), поликристаллические аналоги ДТГ-4-6.

В результате поиска альтернативы изотопной продукции на основе ^6Li был разработан термолюминофор на основе гадолиния $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Gd,Na}$ (ТЛД-GN). Теоретическая оценка макроскопического сечения поглощения тепловых нейтронов соединений $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Gd,Na}$ и $^6\text{LiF}:\text{Mg,Ti}$ (обогащение ^6Li 90,25%) составляет $\Sigma(\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Gd,Na}) = 6,857 \cdot 10^{24} \text{ см}^{-1}$ и $\Sigma(^6\text{LiF}:\text{Mg,Ti}) = 12,64 \cdot 10^{24} \text{ см}^{-1}$.

Несмотря на преимущество LiF по макроскопическому сечению поглощения тепловых нейтронов, регистрация более эффективно протекает в ТЛД состава $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Gd,Na}$, что, вероятно, связано с разной эффективностью накопления энергии в матрицах люминофоров при прохождении тяжелых заряженных α -частиц и трития, образующихся при делении ^6Li , а также



Р и с. 3. Термолюминесценция детекторов для дозиметрии тепловых нейтронов: 1 — ДТГ-4-6; 2, 3 — ${}^6\text{LiF:Mg,Ti}$, полученные методом прессования и по импрегнационной технологии соответственно; 4 — $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Gd,Na}$



Р и с. 4. Термолюминесценция ТЛД состава $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Gd,Na}$ после облучения ${}^{238}\text{Pu}\text{—Be}$ (1), ${}^{137}\text{Cs}$ (2)

потока γ -излучения и конверсионных электронов (продукты деления гадолиния).

На рис. 3 показано термовысвечивание ТЛД для регистрации тепловых нейтронов. Индивидуальный эквивалент дозы предварительного облучения ${}^{238}\text{Pu}\text{—Be}$ составил 0,5 мЗв.

Отдельное место при регистрации нейтронов занимает минимизация γ -чувствительности функционального материала, поскольку в нейтронном излучении всегда содержится сопутствующее γ -излучение. Были проведены сравнительные испытания разработанного термолюминофора для регистрации тепловых нейтронов при нейтронном облучении и γ -источниками. На рис. 4 показана термолюминесценция ТЛД-GN после облучения ${}^{137}\text{Cs}$ и

тепловыми нейтронами с обеспечением индивидуального эквивалента дозы 10 мЗв.

Таким образом, в ходе технологических исследований были разработаны:

эффективные технологические процессы синтеза термолюминофоров для β -, γ -дозиметрии $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$ (ТЛД-580К), $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$ (ТЛД-580Н) и $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Li}$ (ТЛД-580Л);

технология синтеза поликристаллического термолюминофора ${}^6\text{LiF:Mg,Ti}$ (ТЛД-600), имеющего аналогичные монокристаллическим образцам характеристики;

методика прессования ТЛД, обеспечивающая высокие механические характеристики;

термолюминофор $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Gd,Na}$ (ТЛД-GN) для нейтронной дозиметрии, начаты испытания его характеристик.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Torres-Cortés C., Baltazar-Raigosa A., Vega-Carrillo H. e.a. Synthesis and thermoluminescent response to γ -rays and neutrons of $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$ and $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$. — Appl. Rad. Isot., 2019, v. 147, p. 159—164.
2. Furetta C., Prokic M., Salamon R., Kitis G. Dosimetric characterisation of a new production of $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$ thermoluminescent material. — Ibid., 2000, v. 52, № 2, p. 243—250.
3. Riahi-Noori N., Sarraf-Mamoory R. LiF(Mg,Ti) thermoluminescence dosimetry pellets. — Am. Ceramic Soc. Bull., 2005, v. 84, № 9, p. 45—48.
4. Алексеев А.Г., Кириухин О.В., Батухтина О.И. Исследование зависимости характеристик термолюминесцентных детекторов от величины ЛПЭ излучения. — Евразийский союз ученых, 2019, № 2-1(59), с. 43—47.
5. Мосягина И.В., Ивкина О.В., Шарипова М.А., Чебышов С.Б. Разработка комбинированных полимерных материалов для регистрации нейтронов различной энергией. — Атомная энергия, 2022, т. 133, вып. 2, с. 98—101.
6. Torres-Cortes C., Hernández-Adame L., Baltazar-Raigosa A. e.a. Synthesis and thermoluminescent response to γ -rays and neutrons of $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$ and $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$. — Appl. Rad. Isot., 2019, v. 147, p. 159—164.
7. Legorreta-Alba O., Cruz-Zaragoza E., Diaz D., Marcazzo J. Synthesis of $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy}^{3+}$ and thermoluminescent characteristics at low doses of β -radiation. — J. Nucl. Phys. Mater. Sci. Rad. A, 2018, v. 6, № 1, p. 71—76.

Поступила в Редакцию 3.04.23