ПРАКТИЧНЕ ЗАСТОСУВАННЯ ТВЕРДОТІЛЬНИХ ТРЕКОВИХ ДЕТЕКТОРІВ У ДОЗИМЕТРІЇ

С.Г.Горбачов, В.Б. Герасименко, Т.А.Волкернюк, П.Б.Арясов

Науково-дослідний інститут радіаційного захисту (НДІ РЗ) Академії технологічних наук України, м. Київ, Україна e-mail: zorg@rpi.kiev.ua

У статті розглянутий підхід до спектрометрії α-частинок з використанням твердотільних трекових детекторів (ТТТД) типу CR-39 в енергетичному інтервалі 4-6 МеВ. Описані етапи отримання експериментальної інформації від опромінення ТТТД до їх травлення з наступним аналізом окремих треків. Представлені результати вимірів зразків, які містять ізотопи плутонію, фільтри з гарячими частинками, а також залежність мінімальної активності, що детектується (МДА), від часу експозиції та активності мітки для одного з нуклідів.

Вступ

Твердотільні трекові детектори (ТТТД) мають суттєві переваги перед багатьма ядерними детекторами активного типу (такими, що використовують електронне обладнання): точне визначення координат частинок, що реєструються, абсолютна нечутливість до супутнього увипромінювання, малий власний фон, можливість проведення довготривалих вимірів, відсутність необхідності використання електроніки під час експонування дослідних зразків [1]. Такі детектори дешеві, легкі (декілька грам), мають довготривалу стабільність, негігроскопічні та належать до типу пристроїв пасивного накопичення. В останні роки спостерігається значний прогрес у технології збирання інформації від ТТТД з використанням попереднього хімічного травлення детекторів та автоматизованих комплексів, які включають в себе оптичний мікроскоп, скануючу платформу, відеокамеру і комп'ютер.

Матеріали

ТТТД (CR-39 зокрема) може розглядатися як детектор рідкісних подій, що вимагають тривалих експозицій зразків з великими площами (фольги, порошки, тощо). Ця особливість дозволяє організовувати довготривалі вимірювання одночасно десятків-сотень детекторів з використанням лише однієї системи для їх обробки.

Використання ТТТД для реєстрації αчастинок дає можливість визначення їхньої енергії та пробігу за допомогою аналізу форми окремих протравлених треків. При візуальній оцінці дуже важко визначати характеристики тисяч, іноді і десятків тисяч, треків ядерних частинок. Тому для автоматизованої обробки інформації з ТТТД необхідним є використання зображень структури поверхні протравлених детекторів, оцифрованих із мікроскопа [2]. Комп'ютерний аналіз дозволяє визнапараметри зображень чати кожного об'єкта, що дає можливість проводити ідентифікацію різних типів треків та їх дискримінацію від шумів [3]. Однак, селективні характеристики, за якими проводиться ідентифікація, є дуже нечіткими та залежать від умов експозиції, травлення та сканування. Внаслідок цього алгоритмічний опис спостережуваних об'єктів є надзвичайно складним.

Підхід грунтується на вимірюванні параметрів протравленого треку. Метод складається з наступних частин: підготовка мішеней (спалювання первинних проб - хімічне виділення трансуранових елементів (ТУЕ) – введення мітки – електролітичне осадження на мішень) – попереднє травлення неопромінених детекторів – експонування детекторів з пробами - травлення опромінених детекторів – обробка поверхні детекторів – аналіз результатів обробки.



Рис. 1. Зміна форми лунки треку для альфа-частинки з енергією 5.15 МеВ (²³⁹⁻²⁴⁰Pu) в залежності від товщини витравленої поверхні пластику CR-39 (**a** – XY-проекція, **б** - XZ – проекція).

При потраплянні α-частинки у детектор CR-39 вона руйнує полімерні зв'язки, утворюючи вільні радикали (рис. 1). Вони реагують із розчиненим тут киснем, утворюючи латентний трек. Хімічне травлення – найбільш розповсюджений метод "фіксації" та подальшого збільшення зон первинних дефектів в ТТТД. Таке травлення здійснюється шляхом більш швидкого розчинення (руйнування) речовини детектора в пошкоджених ділянках відносно інших областей. Лінійна швидкість хімічної реакції вздовж зони первинних дефектів у детекторі визначається як швидкість травлення треку Vt. Травлення оточуючої непошкодженої речовини – як швидкість травлення поверхні Vb.

Коли трек протравлений до кінця, повний час травлення T_{etch} може бути представлений двома складовими. Це час травлення латентного треку T_t з середньою швидкістю $\overline{V_t}$ та час травлення непошкодженої речовини детектора T_b

(від моменту досягнення розчином для травлення кінця треку і до закінчення процесу травлення) зі швидкістю V_b :

$$T_{etch} = T_t + T_b = \frac{R}{\overline{V_t}} + \frac{d}{2V_b}.$$
 (1)

Із формули (1) можна вивести просте лінійне співвідношення, пов'язавши пробіг частинки *R* з діаметром заокруглення кінця треку *d*:

$$R = \overline{V_t} T_{etch} - \frac{V_t}{2V_b} d .$$
 (2)

Більшим значенням енергії E відповідають більші пробіги R. Більшим пробігам R відповідають менші значення діаметрів протравлених треків d. У координатах (m,d) це відповідає горизонтальним локусам. Зменшення малої вісі m в межах локуса відповідає збільшенню величини кута входження альфа-частинки у тіло детектора (відносно нормалі до поверхні).

В даній роботі поверхня опромінених і протравлених детекторів оброблялась за допомогою оптичної скануючої системи на базі мікроскопа Olympus BX-60 та рухомої платформи High Prior. Типовий розмір треків 5÷20 мікрон, тому для зняття якісного зображення застосовувався об'єктив 20Х. При цьому розмір фрейму (області, яка знімається оптично приєднаною відеокамерою) складає приблизно 320×400 мікрон (рис.2). За допомогою моторизованої платформи послідовно сканувалась уся поверхня опромінення. При цьому використовувалась спеціально розроблена методика автофокусування (як альтернатива автофокусуванню, що організоване у платформі виробником), щоб фокальна площина постійно співпадала з поверхнею детектора (рис. 3). Після оцифровування зображення поверхні детектора проводилась програмна обробка на предмет виділення протравлених нахилених треків з чіткими формами. Далі за допомогою формули (2) та розробленої методики обробки цих зображень

визначались енергії зареєстрованих αчастинок.



Рис. 2. Зображення окремого фрейму (320 х 400 мікрон) в режимі променів, що проходять.

За допомогою оптичного мікроскопа можна визначити наступні параметри XY-проекції (виду зверху): велику M і малу m вісі треку, велику вісь ротової горловини L, діаметр закруглення кінця треку d (рис. 3).



Рис. 3. Зображення протравлених треків для двох режимів роботи мікроскопа (**a** - режим відбитих променів; **б** - режим променів, що проходять).

ТТТД дозволяють визначати окрім геометричних параметрів, що характеризують окремі треки, також глобальні координати розташування треків на поверхні детектора та напрямок руху альфа-частинки, що входить у тіло детектора. Це дозволяє виділити дві області: 1) опромінена дослідним зразком; 2) неопромінена. Другу область можна використовувати для оцінки внеску фонових треків.

Чутливість до координат і напрямків руху дозволяє відкидати деяку частину фонових треків, утворених під час опромінення і розташованих в межах області 1, тобто там, де проявляється спільний вплив як радіонуклідів зразка, так і фонового радону. Розпад одного ядра радону-222 (радону) або радону-220 (торону) супроводжується вильотом трьох альфа-частинок протягом короткого часу (такого, що значно менше часу опромінення). Виліт цих альфа-частинок - ізотропний. Існує імовірність того, що дві (або навіть усі три частинки) полетять у напрямку на детектор, що приведе до утворення треків, які за формою практично не будуть відрізнятися від частинок джерела. Однак, існування спільного центра вильоту буде однозначно інтерпретувати цю сукупність треків як фонові. Імовірність того, що такі треки можуть утворитися шляхом опромінення дослідним зразком – надзвичайно мала.

На рис.4 наведені результати розрахунків оцінки мінімальної активності, що детектується (МДА), за формулою (2) для ізотопів ²³⁹⁻²⁴⁰Ри та ²³⁸Ри при різному часі вимірювання (від 1 до 100 днів) та активності ²⁴²Ри (мітки) (від 0 до 4 мБк). При цьому вважалося:

середній фон – $\overline{N}_{\phi i} = 0.12 \ d^{-1}$; відносна похибка - $\delta = 0.5$; довірчий інтервал - $\pm 2\sigma$; ефективність - $\mathcal{E}=\mathcal{E}_i=0.2$; вклад ²⁴²Ри в зони відповідно ²³⁹⁻²⁴⁰Ри та ²³⁸Ри - 0.12 та 0.03 (рис. 4).

Результати

Проведено виміри зразків із вмістом α -випромінювачів ізотопів плутонію чорнобильського походження на рівні менше 1 мБк в зразках. Отримано результати зразків, які мали вміст окремих ізотопів ²³⁸Pu, ²³⁹⁻²⁴⁰Pu, ²⁴²Pu з активністю в діапазоні 10⁻⁵-10⁻³ Бк, в кількості 50 штук, що були виміряні з часом експонування від 7 до 75 днів. Рівень фону при проведенні вимірювань склав 3-6 треків на місяць в енергетичному інтервалі 4,8-5,5 МеВ. Проведена порівняльна характеристика різних методів детектування ізотопів (див. рис. 6).

МДА для ізотопів ²³⁸Pu, ²³⁹⁻²⁴⁰Pu при відсутності мітки (²⁴²Pu) та часом виміру 2 місяці склала $5 \cdot 10^{-5}$ Бк. У ще менш активних пробах проводилася процедура відкидання треків, які виникли при розпаді торію-228 та радію-226 (кластери треку), що дозволило зменшити вплив цих ізотопів в 3-4 рази. Отримано гарне співвідношення з вимірами активності з використанням напівпровідникових детекторів (див. роботу [4]).

Метод знаходження та визначення активності окремих гарячих частинок (ГЧ) з використанням ТТТД був перевірений експонуванням фільтрів, які містили такі ГЧ. Ці фільтри були отримані за допомогою стандартних методів контролю повітря робочої зони в ОУ. Після експонування з фільтром протягом 24 годин детектори були протравлені в 6М розчині NaOH при температурі 72°С протягом 8 годин. Після травлення зображення треків детектора були оброблені автоматизованим цифровим методом. На одному зі зразків розміром 1.5х3 см було ідентифіковано 19 ГЧ, загальна кількість ідентифікованих треків склала (без треків гарячих частинок) 981.

У кластерах («зірки») знаходилось 858 треків (з 18 гарячих частинок) та одна гаряча частинка з кількістю треків понад 1000 (рис. 5), що, фактично, формувала понад 60% активності досліджуваного зразка.



Рис. 4. Залежність мінімальної активності, що детектується (МДА), від часу експозиції при різних активностях мітки для ²³⁹⁻²⁴⁰ Ри.



Рис. 5. Зображення гарячої частинки (справа внизу волосся людини).



Рис. 6. Типові спектри, отримані з використанням ТТТД (**а**,**б**) і НПД (**в**), для зразків з різним відносним вмістом ізотопів плутонію. Час експозиції 21 доба – для ТТТД; 2 доби – для НПД.

Висновки

Удосконалено метод ідентифікації треків за допомогою застосування штучної нейронної мережі зустрічного поширення та отримано покращення енергетичної роздільної здатності методу. Весь процес від сканування до отримання результату переведено у автоматизований режим. Застосування представленого методу дає можливість вимірювати зразки з активністю 1·10⁻⁵ Бк та менше. Оброблено понад 100 зразків з хімічно виділеними ізотопами ²³⁸Pu, ²³⁹⁻²⁴⁰Pu, ²⁴²Pu та декілька десятків зразків повітряних фільтрів, що містять радіоактивні ГЧ, використаних при виконанні робіт на "Об'єкті Укриття". За допомогою наведеного методу встановлено можливість детектування та ідентифікації гарячих частинок у зразках, що досліджуються.

Література

- Брегадзе Ю.И., Степанов Э.К., Ярына В.П. Прикладная метрология ионизирующих излучений. – М.: Энергоатомиздат, 1990. – 264 с.
- Fews A.P., Fully automated image analysis of etched tracks in CR-39 -Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. – 1992. -Vol. 71. – P. 465.
- 3. Gammage R., Espinosa G., Digital imaging system for track measurements -

Radiat. Measur. – 1997. – Vol. 28. - P. 835.

- Дементьев В.А. Измерение малых активностей радиоактивных препаратов. – М.: Атомиздат, 1967. – 140 с.
- Нормы радиационной безопасности Украины (НРБУ - 97). – Киев, 1997. – 121 с.

SOLID STATE NUCLEAR TRACK DETECTORS APPLICATION IN DOSIMETRY

S.G. Gorbachov, V.B.Gerasymenko, T.A.Volkernyuk, P.B. Aryasov

Radiation Protection Institute, Kyiv e-mail: zorg@rpi.kiev.ua

Alpha spectrometry approach using solid state nuclear track detectors (SSNTD) of CR-39 type is considered within the energy range 4-6 MeV. Experimental data obtaining stages are described from the SSNTD exposure procedure to the follow analysis of individual tracks. The results of measurements for samples containing plutonium isotopes are presented as well as the dependence of minimal detectible activity on the exposure time and on the spike (tracer) activity for one of the nuclides.