

# Расширение возможности применения детекторов фотонного излучения для высокодозных измерений методами ЭПР дозиметрии

О.В. Ткачёв<sup>1</sup>, М.Г. Березовская<sup>1</sup>, М.С. Иванова<sup>1</sup>, А.А. Коновалов<sup>1</sup>, И.Д. Приходько<sup>1</sup>,  
А.И. Батин<sup>1</sup>, А.Г. Березовский<sup>1</sup>

<sup>1</sup> ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ им. академ. Е. И. Забабахина», Снежинск, Россия

*В настоящей работе представлены исследования применения ЭПР-дозиметрии к стандартным термолюминесцентным детекторам ПСТ на основе алюмофосфатного стекла ИС-7. Образцы облучались дозами в диапазоне от  $10^4$  до  $10^7$  Р от источника гамма-излучения  $^{60}\text{Co}$ . По результатам работы были получены дозовые зависимости сигналов электронного парамагнитного резонанса с термолюминесцентных детекторов ПСТ. Сублинейный характер полученной зависимости вплоть до  $10^7$  Р указывает на потенциальную возможность использования данных детекторов для целей высокодозной дозиметрии и расширение диапазона применимости методики ПСТ. Дополнительно в работе были уточнены вопросы фединга детекторов и температурного отжига образцов, которые также подтверждают перспективность регистрации сигналов ЭПР с термолюминесцентных детекторов ПСТ вследствие их высокой стабильности и низкого фединга.*

Термолюминесцентная дозиметрия широко применяется для измерений ионизирующих излучений практически с самого начала развития атомной энергетики и ускорительной техники. Ее уникальной особенностью является широкий, в сравнении с другими методами, диапазон измерений по дозе при различной мощности дозы импульсного фотонного излучения. В экспериментальной технике этот метод особенно часто используется на ускорителях заряженных частиц, поскольку малые габариты термолюминесцентных детекторов позволяют выполнять локальные измерения в полях излучения с большой неравномерностью, характерной для этих установок.

Однако используемые в РФЯЦ-ВНИИТФ и предприятиях ОПК средства термолюминесцентной дозиметрии имеют ограничение по верхнему пределу диапазона измерений, связанное с эффектом увеличения чувствительности (т.н. сверхлинейности). В частности, у наиболее распространенных детекторов типа ПСТ на основе алюмофосфатного стекла постоянство чувствительности сохраняется только при измерении экспозиционной дозы тормозного излучения до  $10^5$  Р, а далее наблюдается резкое изменение их чувствительности примерно в 2-3 раза (рисунок 1), что ограничивает диапазон их применения [1]. Таким образом, остается актуальной проблема обеспечения дозиметрического сопровождения радиационных испытаний при предельных уровнях нагружения, что влечет за собой развитие методик высокодозной дозиметрии, либо поиск способов усовершенствования и расширения диапазонов применения имеющихся аттестованных методик.

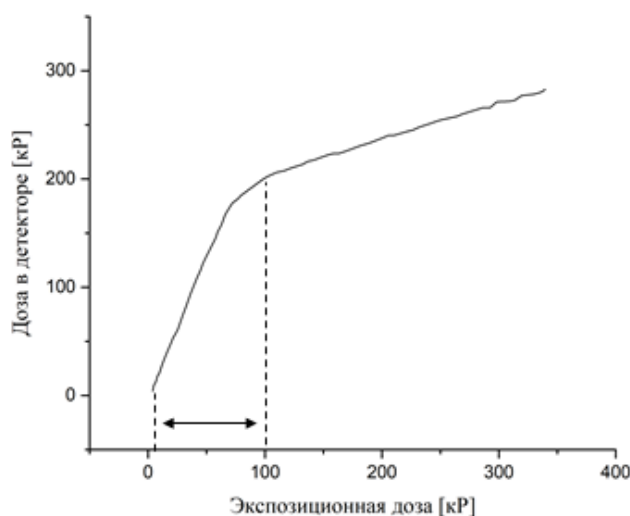


Рисунок 1. Стандартный диапазон измерения детекторов ПСТ

Анализ литературы и проведенные ранее исследования [2,3] показывают на возможность расширения диапазонов применения имеющихся дозиметрических методик путем регистрации и использования сигналов электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) с облученных детекторов.

Регистрация сигналов ЭПР не уничтожает информацию с образцов, как это происходит например в термолюминесцентной дозиметрии и возможно проведение повторных измерений, что исключает ошибку оператора. Кроме того, к преимуществам детекторов ЭПР можно отнести: возможность управления характеристиками детектора (изменяя массу, плотность, эффективное зарядовое число и массовое число); простота изготовления детекторов; метод неразрушающего контроля и много другое.

Таким образом, *цель данной работы* заключалась в апробация возможности применения детекторов фотонного излучения типа ПСТ в области доз более  $10^5$  Р путем использования сигналов электронного парамагнитного резонанса облученных образцов.

### Методы эксперимента и образцы

Электронный парамагнитный резонанс - резонансное поглощение (излучение) электро-магнитных волн радиочастотного диапазона ( $10^9 - 10^{12}$  Гц) парамагнетиками, парамагнетизм которых обусловлен электронами. Суть ЭПР дозиметрии заключается в следующем: в облученном теле возникают парамагнитные радиационные дефекты, имеющие неспаренный электрон, количество которых, пропорционально поглощенной дозе и может быть определено методом электронного парамагнитного резонанса ЭПР [4]. Регистрация проводилась с помощью анализатора радиоспектрометрический электронного парамагнитного резонанса EPRA 9600 со спектрометрическим блоком CMS-8400. («АДАНИ», г. Минск), чувствительная область резонатора прибора:  $23 \times 10 \times 42$  мм. Условие резонанса в спектрометре достигается путем линейного изменения напряженности магнитного поля. Параметры регистрации спектра подбираются для каждого вещества экспериментально.

Интенсивность резонансного поглощения электромагнитного поля веществом пропорциональна концентрации дефектов, и может быть измерена как размах между максимумом и минимумом центрального пика  $P_A$  (peak-to-peak) спектра ЭПР [5]. Его значение пропорционально измеряемой дозе. Характерный наблюдаемый вид ЭПР спектра до и после облучения для образцов ПСТ представлен на рисунке 2.

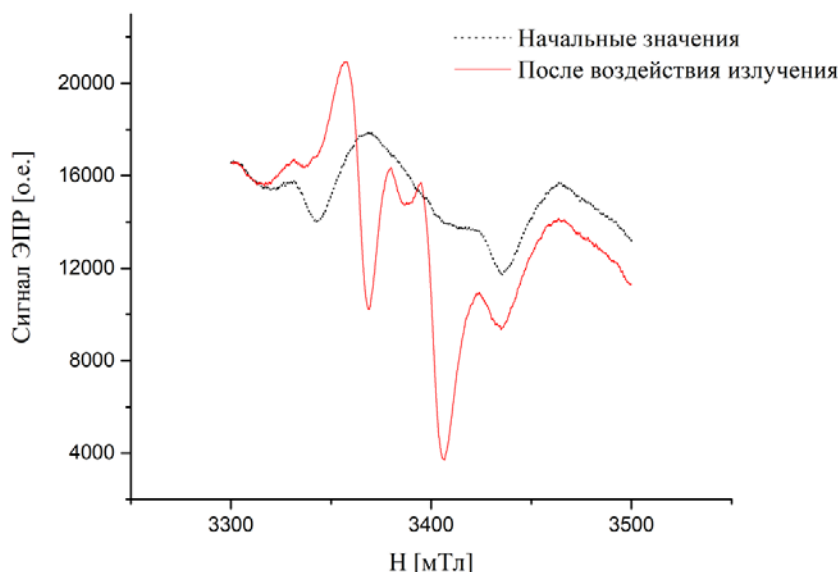


Рисунок 2. Пример наблюдаемого спектра ЭПР для детекторов ПСТ (доза облучения – 1 МР)

Исследовательскими образцами являлись термолюминесцентные детекторы ПСТ на основе алюмофосфатного стекла марки ИС-7. Образцы облучались дозами в диапазоне от  $10^4$  до  $10^7$  Р от источника гамма-излучения  $^{60}\text{Co}$ .

### Результаты экспериментов

Первым этапом исследования было определение величины отклика спектра ЭПР в зависимости от дозы облучения ПСТ детектора и нахождение линейного участка полученной дозовой зависимости. Полученные экспериментальные данные представлены в виде общей зависимости интенсивности резонансного поглощения от дозы облучения на рисунке 3. Дозовая зависимость образцов удовлетворительно аппроксимируется уравнением вида  $y=0,5+0,7x$ , где  $x$  соответствует значению

десятичного логарифма дозы облучения ( $\lg D$ ) в кР, а  $y$  соответствует значению десятичного логарифма интенсивности сигнала ЭПР ( $\lg I$ ) в отн.ед. Достоверность аппроксимации составляет не менее 94% (по данным программного пакета Origin).

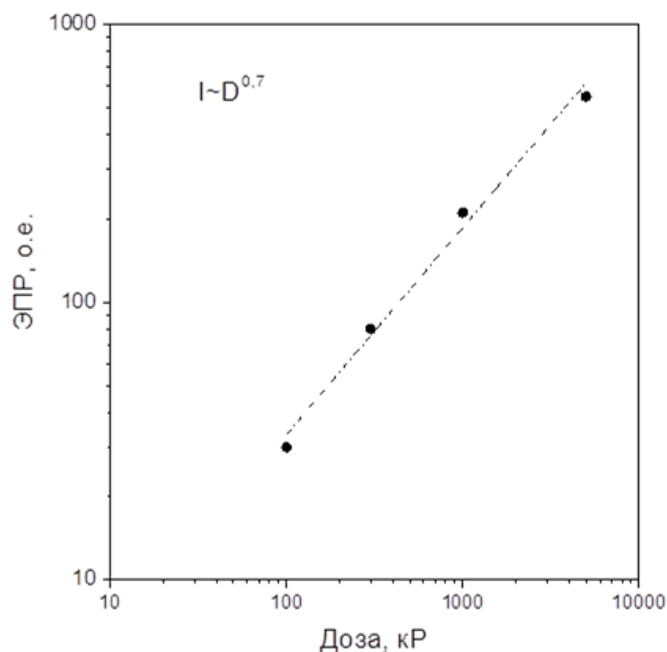


Рисунок 3. Дозовая зависимость сигнала ЭПР детекторов ПСТ

Как видно из рисунка 3, интенсивность спектральной линии сигнала ЭПР с ростом дозы облучения увеличивается сублинейно. Этот факт указывает на принципиальную возможность использования ПСТ детекторов в качестве детекторов ионизирующего излучения в диапазоне высоких доз.

#### Исследования параметров фединга и процессов термического отжига детекторов

На рисунке 4 показаны значения амплитуд ЭПР сигналов ПСТ детекторов, облученных дозой 5000 кР и выдержанных затем при комнатной температуре в течение 6 дней в светонепроницаемом контейнере. Из полученных результатов видно, что при комнатной температуре амплитуда ЭПР-сигнала ПСТ детекторов за первые 6 дней уменьшается в среднем примерно на 8 %, что является приемлемым значением с точки зрения применимости предлагаемого способа регистрации сигналов.

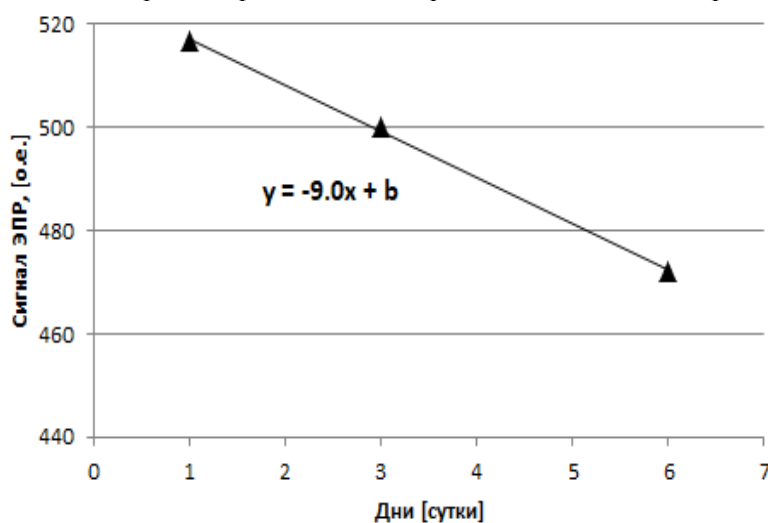


Рисунок 4. Показатель фединга сигнала ЭПР с детекторов ПСТ

На рисунке 5 представлены полученные кривые изохронного отжига образцов, облученных экспозиционной дозой  $10^1$ - $10^4$  кР, длительность выдержки при каждом значении температуры составляла 30 минут. Видно, что в диапазоне температур 370-420 К наблюдается резкое уменьшение радиационно-наведенного сигнала ЭПР. При температуре около 450 К сигнал ЭПР увеличивается, что указывает на появление термически активированных дефектов. Концентрация этих дефектов не зависит от дозы гамма-квантов. Отметим также, что температура, при которой наблюдается уменьшение радиационно-наведенного сигнала ЭПР близка к температуре термовысвечивания детекторов ПСТ, поэтому наиболее вероятно, что дефекты содержащие информацию одинаковы.

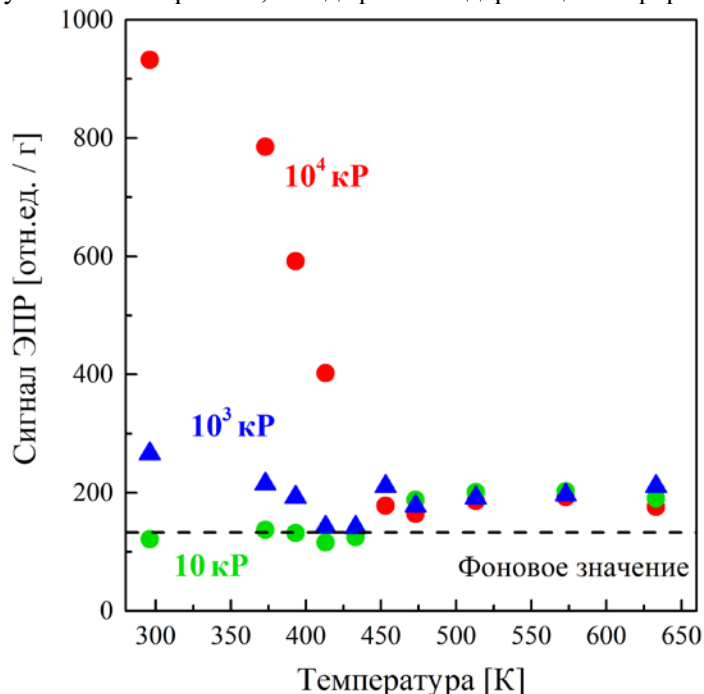


Рисунок 5 – Кривые изохронного отжига образцов ПСТ, облученных различной экспозиционной дозой (погрешность измерений в пределах символа)

Используя тот факт, что размах между максимумом и минимумом центрального пика ЭПР сигнала пропорционален концентрации дефектов  $N$  и предполагая простейшую экспоненциальную кинетику, можно с помощью (1-3) определить из кривых изохронного отжига энергию активации  $E_A$  и частотный фактор  $\lambda_0$ , характеризующие ЭПР центры, вводимые радиацией. Для этого необходимо построить на основе экспериментальных данных зависимость левой части выражения (3) от  $1/k_B T$  и аппроксимировать полученную зависимость прямой линией. Угол наклона прямой равен энергии активации отжига дефектов, а свободный член позволяет вычислить частотный фактор.

$$N(t) = \exp(-\lambda t), \quad (1)$$

где  $N_0$  – начальная концентрация дефектов,  $\lambda$  – постоянная скорости отжига,  $t$  – время после начала отжига,

$$\lambda = \lambda_0 \exp(-E_A/k_B T), \quad (2)$$

где  $\lambda_0$  – частотный фактор,  $E_A$  – энергия активации,  $k_B$  – постоянная Больцмана,  $T$  – температура.

$$\ln \left( - \left[ \ln \frac{N_i}{N_{i-1}} \right] \right) = \ln(\lambda_0 \Delta t) - \frac{E_A}{k_B T} \quad (3)$$

В результате была получена величина энергии активации 0,3 эВ, частотный фактор составил около  $2 \text{ с}^{-1}$ . Типичный частотный фактор при отжиге структурных повреждений составляет порядка  $10^{13} \text{ с}^{-1}$  [6], поэтому наиболее вероятно, что наблюдаемый процесс отжига связан с термически активированной ионизацией (перезарядкой) структурных повреждений.

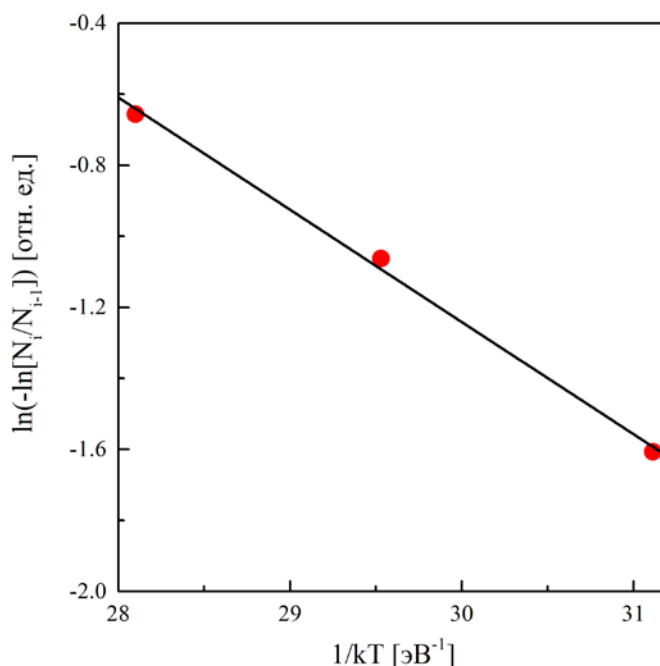


Рисунок 6– Определение энергии активации термического отжига ЭПР центров

### Заключение

В результате проделанной работы было показано, что:

- Дозовая зависимость сигналов электронного парамагнитного резонанса с термолюминесцентных детекторов ПСТ носит сублинейный характер в двойных логарифмических координатах вплоть до  $10^7$  Р;
- При комнатной температуре амплитуда ЭПР-сигнала ПСТ детекторов за первые 6 дней уменьшается в среднем на 8 %;
- Дефекты, приводящие к радиационно-индуцированному сигналу ЭПР отличаются от дефектов, приводящих к термолюминесценции.

Результаты указывают на потенциальную возможность использования детекторов ПСТ для целей высокодозной дозиметрии и расширения диапазонов применения имеющейся методики путем регистрации сигналов ЭПР в диапазоне доз более  $10^5$  Р

### Литература

1. В.С. Кортон, В.П. Пудов, С.В. Звонарев. Состояние и перспективы развития термолюминесцентной дозиметрии, Материалы конференции «X Межотраслевая конференция по радиационной стойкости», г.Саров, (октябрь 2012)
2. W. L. McLaughlin. ESR dosimetry. Radiation Protection Dosimetry, 1993, Vol. 47, pp. 255–262.
3. О.В. Ткачев, А.Н. Гладышева, М.Г. Березовская. «Определение поглощенной дозы в SiO<sub>2</sub> с использованием метода электронного парамагнитного резонанса», ВАНТ. Физика радиационного воздействия на радиоэлектронную аппаратуру, №1 – 2024г
4. В.И. Иванов. Курс дозиметрии: Учебник для вузов. – 4-е изд., перераб. и доп. – М.: Энергоатомиздат, 1988, стр. 400
5. Дж. Вертц, Дж. Болтон. Теория и практические приложения метода ЭПР. М.: Издательство «Мир». 1975
6. Б.И. Болтакс. Диффузия и точечные дефекты в полупроводниках. Изд-во «Наука», Ленингр. Отд., Л., 1972, 1-384