

Szilárdtest dózismérő rendszerek fejlesztése, vizsgálata és alkalmazása az Izotópkutató Intézetben

Osvay Margit* és Katona Tünde

MTA Izotópkutató Intézet, 1525 Budapest Pf. 77

Abstract

Investigations, preparations and applications of various thermoluminescence (TL) dosimetry systems of the Institute of Isotopes of the Hungarian Academy of Sciences are briefly reviewed. Dosimetric properties of $Al_2O_3:Mg,Y$ ceramic TL doseimeters developed for reactor dosimetry purposes are given and a two-elements doseimeter system ($CaSO_4:Tm$ and $Al_2O_3:C$) for environmental monitoring has been designed.

Keywords: TL dosimetry, $Al_2O_3:Mg,Y$ ceramic TL doseimeters, high temperature, environmental dosimetry, stratosphere

Kivonat

Jelen közleményünkben két új fejlesztés és vállalkozás sikeréről adunk számot. Nagy (Gy-10 kGy) gamma dózisok mérése magas hőmérsékleten atomreaktorban és nagyon kis (100 nGy-10 mGy) dózisok mérése a környezetben és a sztratoszférában.

Kulcsszavak: TL dózismérés, $Al_2O_3:Mg,Y$ TL dózismérő, magas hőmérséklet, környezeti dózismérés, sztratoszféra

I. BEVEZETÉS

A termolumineszcencia (TL) módszer a környezeti, személyi és klinikai dozimetriában ma már elfogadott az ionizáló sugárzás mérésére [4]. A termolumineszcencia termikusan stimulált fényemisszió olyan szigetelő és félvezető anyagoknál, melyekben előzetesen ionizáló sugárzás abszorbeálódott. A TL olyan foszforeszcencia, melynél az emittáló anyag hőmérséklete növekszik. A módszer lényege: a besugárzott, majd a termolumineszcencia kiértékelő berendezésben megfelelően felmelegített (vagyis kiértékelt) dózismérők által kibocsájtott fény arányos az elnyelt sugárdózissal.

A TL emisszió alatt az anyagok fotovezetést is mutatnak, elektromos töltések mozognak a kristályrácsban. A kristályban levő hibák illetve szennyeződések, szándékosan bevitt adalékanyagok (aktivátorok) jelentős szerepet játszanak: csapda szinteket hoznak létre a vezetési és a valencia sáv között. A legjelentősebb elektron csapda illetve lyuk csapda neve F centrum illetve V centrum. A TL jelzés intenzitása az anyag melegítése során arányos az elektronok és lyukak lumineszcencia centrumban történő rekombinálódásának számával.

A TL azon ritka fizikai jelenség, melyet sokkal sikeresebben alkalmaznak, mint magyaráznak. Kiterjedt nemzetközi kutató munka folyik az elmélet és alkalmazás területén több évtizede. 1965 óta 3 évente Nemzetközi Szilárdtest Dozimetria Konferenciát tartanak. A „11th International Conference on Solid State Dosimetry” konferenciát 1995-ben a mi intézetünk rendezte Budapesten.

A világ élvonalába tartozó kutatóintézetekkel együtt közel 30 éve bevezettük és alkalmazzuk a TL módszert az izotópgyártásnál és más sugárveszélyes munkakörben dolgozóknál személyi dozimetriai ellenőrzésre.

A kis méretű (átmérő: 5 - 8 mm), sokszor felhasználható, könnyen kezelhető TL dózismérők sikeres alkalmazásán túlmenően jelentős kutatási eredményeket értünk el. Ennek során a sugárdozimetria különböző céljaira TL dózismérő rendszereket fejlesztettünk, új kiértékelési módszereket dolgoztunk ki és jelentős alapkutató munkát is végeztünk a TL folyamatok jobb megismerésére.

* osvay@iki.kfki.hu

Az elmúlt évtizedek eredményeit összegezve a következőket emeljük ki:

- Saját fejlesztésű $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ TL dózismérők előállítására kis és nagy gamma dózisos mérésre [7,8,13,14,22]
- TL rendszerek fejlesztése kevert (kis és nagy LET értékű) sugárzási terek szelektív mérésére [15,16]
- $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ felaktiválódásának vizsgálata gyorsneutron dozimetriai célra ciklotron és atomreaktor sugárterében [22,23]
- Fototranszfer termolumineszcens (PTTL) módszer kidolgozása a TL dózismérők újra kiértékelésére [10,11,12]
- Különböző TL dózismérők reprodukálhatóságának összehasonlító vizsgálata atomreaktorok sugárterében [2]
- TL alapjelenségek vizsgálata [18,19]
- Környezeti dozimetria nagyérzékenységű TL dózismérőkkel [3,15]

Jelen közleményünkben két új fejlesztés és vállalkozás sikeréről adunk számot:

- Nagy (Gy-10 kGy) gamma dózisos mérés magas hőmérsékleten atomreaktorban
- Nagyon kis (100 nGy-10 mGy) dózisos mérés a környezetben és a sztratoszférában

II. FELADATOK ÉS MÓDSZEREK LEÍRÁSA

$\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ TL dózismérők alkalmazása magas hőmérsékleten

Az alumíniumoxid kerámia dózismérőket az MTA Izotópkutató Intézetében fejlesztettük ki gamma dózisos szobahőmérsékleten történő mérésre és kezdeményezői lettünk a TL módszer kiterjesztésének a reaktordozimetria területére, ahol nagy gamma dózisosokat (Gy – 10k Gy) kell meghatározni [14].

Kutatási célkitűzésünkben az vezérelt, hogy a kereskedelemben kapható, személyi és környezeti dozimetriai célra (mGy – Gy dózistartomány) jól bevált, rendelkezésre álló TL anyagok nem alkalmasak nagy dózisos megbízható mérésre.

Hazai alapanyagból, polikristályos alumíniumoxid (Al_2O_3) kerámia bázison olyan új TL sugárzásdetektort fejlesztettünk ki és szabadalmaztattunk, melynek érzékenységét és méréstartományát a megfelelően adagolt aktivátorokkal széles határok között lehet változtatni [8]. A sorozatban előállított dózismérő anyag egyik változata sugártechnológiai dozimetriai célra alkalmazható, méréstartománya: 10mGy- 10 kGy.

A sajátfejlesztésű $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ kerámia dózismérőnk számos hazai és külföldi felhasználója között kiemeljük a Paksi Atomerőmű Rt-t, ahol 1999-től 2008-ig ipari méretekben használtuk dózismérőinket a reaktor hermetikus terén belül a dóziseloszlás mérésére, különös tekintettel a dózisviszonyokra az elektromos kivezető kábelek közelében. A hermetikus térben a gamma sugárzási tér legfőbb forrása a primerkörü víz oxigénjéből folyamatosan keletkező ^{16}N , mely rövid felezési idejű, nagyenergiájú (6 MeV) gamma sugárzó izotóp.

A nagyjelentőségű vállalási szerződésünk (a Paksi Atomerőmű Rt, mint megbízó valamint az MTA IKI mint vállalkozó) megkötését megelőzően a megbízó referencia besugárzásokat végzett dózismérőinkkel. Az eredmények pontossága alapján mi nyertünk a Siemens cég által felkínált dózismérő rendszerrel versenyben.

Nukleáris reaktor hermetikus terében meglehetősen „barátságtalanok” a körülmények, mivel 0.1 Gy – 10 kGy nagyságú gamma dózisoskat kell mérni egy év alatt, kevert neutron - gamma sugárterben, 50 – 100°C hőmérsékleten. A legtöbb TL dózismérő nem használható

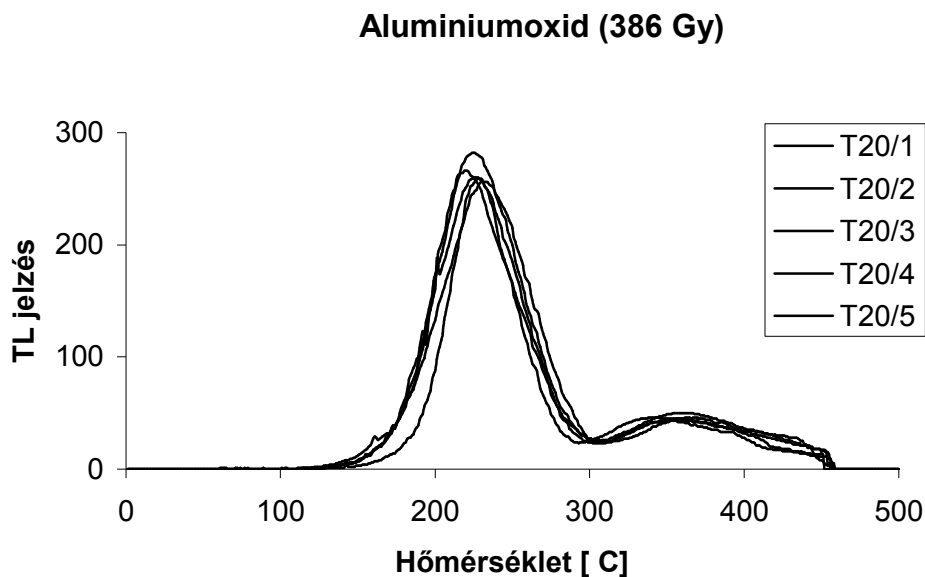
ilyen körülmények között, kivétel az 1400°C-on előállított $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ kerámia (mérete: 8x1 mm), melynek előnyös tulajdonságai:

- széles méréshatár (10 mGy – 10 kGy) gamma dózisok mérésére,
- elhanyagolható neutron érzékenység a gammához képest 6 MeV neutron energiáig,
- megfelelő TL csúcs a magas hőmérsékleten történő alkalmazásra is,
- nagy mechanikai szilárdság, jó reprodukálhatóság.

Az $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ kerámia dózismérőkkel korábban csak szobahőmérsékleten végeztünk méréseket [14]. Ahhoz, hogy a dózismérő alkalmazhatóságát szobahőmérsékletről magas hőmérsékletre is kiterjesszük és vállalkozzunk a meglehetősen sokrétű feladatra, további fejlesztési tevékenységre volt szükség.

Magas hőmérsékleten akkor használható egy TL dózismérő, ha a kifűtési görbe 200°C közelében levő un. dozimetriai csúcson kívül magasabb hőmérsékletű csúccsal is rendelkezik. Az $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ kifűtési görbéje két hőmérsékleti csúccsal rendelkezik (1. ábra).

1.ábra Az $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ kerámia dózismérők (5 db) kifűtési görbéi szobahőmérsékleten



A vizsgálatokhoz használt dózismérőket az Országos Mérésügyi Hivatal (OMH) által hitelesített sugárterekben kalibráltuk. A vizsgálatokhoz használt nagyszámú dózismérőt úgy válogattuk össze, hogy azok TL érzékenysége 10 %-on belül legyen (1. ábra).

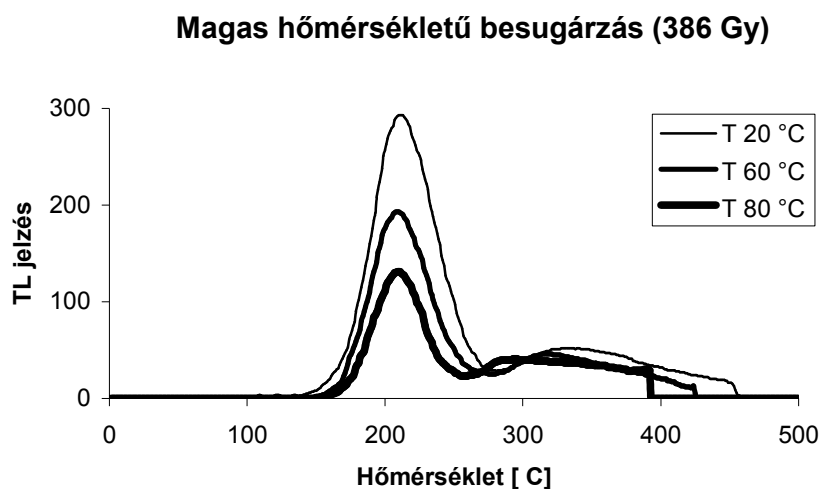
A magas hőmérsékleten is alkalmazható dózismérő rendszer fejlesztéséhez 20 és 100 °C hőmérséklet között szabályozható fűtőberendezést terveztünk és építettünk, hogy megvizsgálhassuk a magas hőmérsékleten történő besugárzás hatásait. A fűthető tartóban elhelyezett dózismérőket automatikus rendszer szállította a 10 Gy/h dózisteljesítményű ^{137}Cs gamma forrás kalibrált sugárterébe. A besugárzott dózismérők kiolvasásához Harshaw 2000 (USA) TL kiértékelőt használtunk. A kiértékelés során lehetőség van a kifűtési görbe dózissal arányos, csúcs alatti területeinek analizálására számítógép segítségével.

A 2. ábrán láthatók a TL dózismérő kifűtési görbéi, melyeket 20, 60 és 80 °C hőmérsékleten, egyenként 386 Gy gamma dózissal történt besugárzás utáni kiértékelésnél kaptunk.

A szisztematikus mérési sorozatok eredményeinek alapján megállapítható, hogy a mérőrendszer jól használható magas hőmérsékleten is dózismérésre megfelelő számítási korrekciók alkalmazásával. A TL dózismérőket az éves főjavítási időszak alatt helyeztük el az atomerőműben, hiszen a hermetikus térbe bejutni csak évente egyszer, a főjavítások alatt lehet.

Az atomerőmű blokkjaiba kihelyezett, megfelelően tokozott, nagyszámú sugárzásdetektorral végzett méréssel feltérképeztük a primer kör közelében uralkodó dózisviszonyokat is.

2. ábra $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$ dózismérők kifűtési görbéi (besugárzás 20, 60 és 80°C-on történt)



A fejlesztés során új tudományos eredményeket is kaptunk a TL dózismérők fading (felejtés) tulajdonságaira. Összehasonlítottuk a „klasszikus” fading (a már besugárzott dózismérők tárolása különböző hőmérsékleten) illetve a magas hőmérsékleten történt besugárzás okozta fading hatását [17]. A szakirodalom hasonló vizsgálatokról nem számolt be.

Környezeti dózisok mérése nagyérzékenységű TL dózismérő rendszerrel

A környezetünkben mindenhol mérhető természetes háttérsugárzás a tengerszint magasságában 100-200 nSv/h, amely két komponensből tevődik össze közel 2/3 illetve 1/3 arányban:

- a Föld természetes háttérsugárzásából (közetekben levő természetes eredetű izotópok),
- a kozmikus sugárzásból (galaktikus és szoláris, Napból eredő sugárzás).

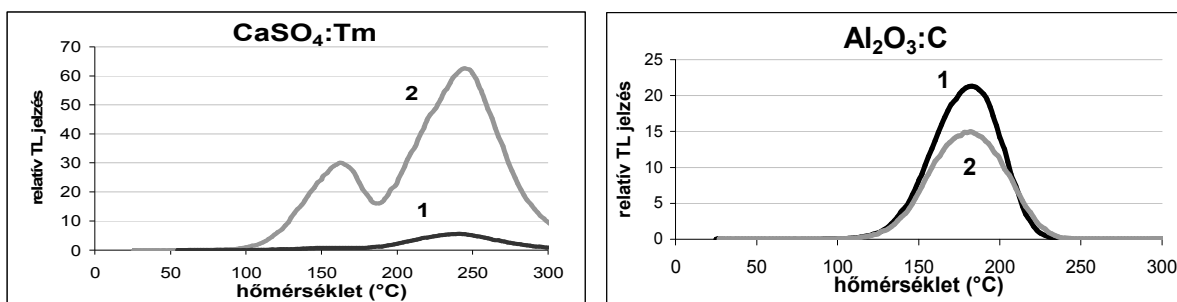
A talaj természetes háttérsugárzását zömmel a kis ionizációs képességű (kis LET-értékű) gamma sugárzás adja, míg a kozmikus sugárzás nagyenergiájú, nagy áthatoló képességű (nagy LET-értékű) részecskéktől ered (protonok, alfarészecskék, neutronok, töltött C, N, O atommagok). A tengerszinttől távolodva nő a kozmikus sugárzás mértéke. A troposzférában, az utasszállító gépek repülési magasságában (8-12 km) a sugárzás közel 1000 nSv/h [5], vagyis néhányszor nagyobb a tengerszintnél mért természetes háttérsugárzás értékénél. Az ionoszféra magasságában, ahol az űrhajók járnak (200-250 km) a kozmikus sugárzás nagysága és összetétele jól ismert, azonban alig van mérési adat az irodalomban a sztratoszféra (12-60 km) dózisviszonyaival kapcsolatban.

Környezeti dózisok mérésére nagyérzékenységű, két elemes TL dózismérő rendszert fejlesztettünk. A választott dózismérő pár, az orosz $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ [1] és a szerb $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ [20] dózismérők megkülönböztethető jelzést adnak a kis (gamma) illetve nagy ionizáló képességű (neutron, alfa) sugárzásokra [3,16].

A kalibrációhoz szükséges besugárzásokat ^{137}Cs gamma, ^{241}Am alfa és $^{238}\text{Pu-Be}$ neutron sugárforrásokkal végeztük. A dózismérők termolumineszcens kifutási görbéi 1,5 mGy gamma illetve 4,5 mGy alfa dózis hatására a 3. ábrán láthatók. A $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ közel 10-szer nagyobb érzékenységet mutat nagy LET értékű sugárzás hatására, mint az $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$, ráadásul az előbbi esetén a TL görbe szerkezete is megváltozik.

Ezt a kevert (kis és nagy LET értékű) sugárterek szelektív mérésére is alkalmas, nagyérzékenységű dózismérő párt sikeresen alkalmaztuk a sztratoszférában, a 38 km magasságban végzett nemzetközi ballon kísérletekben, jelenleg pedig telephelyünkön, Csillebércen folyamatos környezeti dozimetriai összemérés történik ugyanezzel a rendszerrel.

3. ábra $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ és $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ TL kifutási görbéi külön-külön: (1) 1,5 mGy ^{137}Cs gamma illetve (2) 4,5 mGy ^{241}Am alfa sugárzással történt besugárzás hatására



A sztratoszféra dózisviszonyainak meghatározására végzett vizsgálatokhoz 10-10 db két elemes ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ és $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$) dózismérőt használtunk. A tranzitdózis levonása, valamint a TL dózismérő rendszer kalibrációs értékeinek figyelembe vételével meghatároztuk a kis és nagy LET értékű sugárzás arányát is 38 km magasságban.

A ballon kísérlet eredménye azt mutatja, hogy a sztratoszférában a nagy LET értékű sugárzás dominál és a kozmikus sugárzás közel 100-szor nagyobb a tenger szintnél mért kozmikus komponens (30 nSv/h) értékéhez képest. [3].

A telephelyünkön egy éve folyamatban lévő környezeti dozimetriai összemérés eredményei megerősítik a korábban más rendszerekkel mért adatokat. A szabadba, 1 méterrel a felszíntől kihelyezett dózismérő párokkal ($\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ és $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$), havi rendszerességgel végzett ellenőrző mérések alapján megállapítható, hogy a mért dózis adatokból számolt dózisteljesítmények a telephely egy mérési pontján sem haladják meg az átlagos természetes háttér értékét (<2 $\mu\text{Gy}/\text{nap}$), még a kísérleti atomreaktor épülete vagy a kiégett fűtőelem tároló mellett sem.

IRODALOM

- [1] AKSELROD M. S., V.S. Kortov, D.J. Kravetsky, V. I. Gotlib, 1990, Highly sensitive thermoluminescent anion-defective $Al_2O_3:C$ single crystal detectors, *Rad. Prot. Dos.* 32 p.15
- [2] FERNANDES A., I. Goncalves, J. Santos, J. Marques, A. Kling, A. and M. Osvay 2006, Dosimetry at the Portuguese Research Reactor using thermoluminescence measurements and Monte Carlo calculations, *Rad. Prot. Dosimetry* 120 p. 349
- [3] KATONA T., M. Osvay, S. Deme and A. Kovács 2007, Environmental dosimetry using high-sensitivity detectors, *Rad. Phys. and Chemistry* 76 p. 1511
- [4] MCKEEVER S. W. S., M. Moscovitch and P. D. Townsend 1995, *Thermoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses*, Nuclear Technology Publishing, England
- [5] NOLL M., N. Vana, W. Schöner, M. Fugger and H. Brandl 1990, Dose measurements in mixed radiation fields in aircraft with TLD's under consideration of the high temperature ratio, *Rad. Prot. Dosimetry* 66 p. 119
- [7] OSVAY M. and T. Bíró 1980, Aluminium Oxide in TL Dosimetry, *Nuclear Instruments and Methods*, 175 p. 60
- [8] OSVAY M., Sztankovics L., Podhorányi Gy.-né, Bíró T. és Golder F. 1989: Eljárás Alumínium-oxid Alapú Termolumineszcens Sugárázsdetektorok Előállítására, *Magyar Szabadalom* 201 611/89
- [9] OSVAY M., M. Ranogajec-Komor and F. Golder, 1990, Comparative P TTL and PTTL investigations on TL detectors, *Rad. Prot. Dosimetry* 33, p. 135
- [10] OSVAY M., Ranogajec-Komor, F. Golder 1991 Light sensitivity of $LiF:Mg,Ti$, $CaF_2:Mn$ and various Al_2O_3 thermoluminescent detectors, *Kernenergie* 34 p. 116
- [11] OSVAY M. and L. Lembo 1993 Comparative investigations on UV sensitivity of newly developed LiF detectors, *Rad. Prot. Dosimetry* 47 p.227
- [12] OSVAY M. and T. Bíró 1993 Aluminium Oxide (chapter in the book) *Thermoluminescent Materials*, Editor: D.R.Vij, Prentice Hall Inc., USA
- [13] OSVAY M. 1996 Measurements on Shielding Experiments Using $Al_2O_3: Mg, Y$ TL Detectors, *Rad. Prot. Dosimetry* 66 p. 217
- [14] OSVAY M. and S. Deme 1999, Comparative investigation of LiF TL dosimeters using low and high LET radiation fields, *Rad. Prot. Dosimetry* 85 p. 469
- [15] OSVAY M. and M. Ranogajec-Komor 1999, LET dependence of high sensitivity TL dosimeters, *Rad. Prot. Dosimetry* 85, p.121
- [16] OSVAY M. and S. Deme 2006, Application of TL dosimeters for dose distribution measurements at high temperatures in nuclear reactors, *Rad. Prot. Dosimetry* 119 p.271
- [17] PETŐ Á. 1996, Relative yields of radioluminescence and thermoluminescence in several TL phosphors, *Rad. Prot. Dosimetry* 65 p. 123
- [18] PETŐ Á. and A. Kelemen 1996, Radioluminescence properties of $Al_2O_3:C$ TL dosimeters *Rad. Prot. Dosimetry* 65 p. 139
- [19] PROKIC M. and Lars Botter-Jensen 1993, Comparison of main thermoluminescent properties of some TL dosimeters, *Rad. Prot. Dosimetry* 47 p. 195
- [20] RANOGAJEC-KOMOR M., M. Osvay, I. Dvornic and T. Bíró, 1983, Fast neutron detection with Al_2O_3 thermoluminescence dosimeters, *Nuclear Instruments and Methods* 175 p. 60
- [21] RANOGAJEC - KOMOR M. and M. Osvay 1986, Dosimetric characteristics of different TL phosphors, *Rad. Prot. Dosimetry* 17 p. 379
- [22] SANTOS J., J. Marques, A. Fernandes and M. Osvay 2007, Photon and fast neutron dosimetry using aluminium oxide thermoluminescence dosimeters in a pool-type research reactor, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 580 p. 310