

DOZIMETRIA NEUTRONILOR PRIN METODA URMELOR DE FISIUNE

1. Scopul lucrării:

Determinarea dozei de radiații neutronice în canalul lateral al ansamblului de iradiere a Facultății de Fizică prin metoda urmelor de fisiune.

2. Introducere teoretică:

Metoda urmelor de fragmente de fisiune este un caz particular al tehnicii de înregistrare prin urme a particulelor încărcate în detectori solizi de urme de particule. Detectorul utilizat este o folie de plastic în care fragmentele de fisiune sunt înregistrate chiar în timpul activării. Cu alte cuvinte, o probă ce urmează să fie analizată este pusă în contact direct cu un detector de urme și apoi supusă unei iradierii cu neutroni. Fragmentele de fisiune rezultate având energia totală de 200 MeV vor fi înregistrate sub formă de urme în detectorul solid adiacent probei asemenea unor cratere produse în dielectricul din policarbonat. Numărul de urme obținut este proporțional cu concentrația elementului fisionabil din probă, precum și cu fluența de neutroni la care a fost supus ansamblul probă + detector.

Pentru determinarea densităților de urme se folosesc fie microscopae electronice, fie optice și sisteme digitale de măsurare automată a urmelor. Pentru a fi studiate și observate, urmele, care inițial au dimensiuni de 25-50 Å în diametru și câțiva microni lungime, sunt supuse unui tratament chimic, în urma cărora le cresc dimensiunea, devenind vizibile și observabile cu unul din instrumentele precizate mai sus. În figura 1 se poate observa o imagine a urmelor de fisiune surprinse în lexan cu ajutorul microscopului.

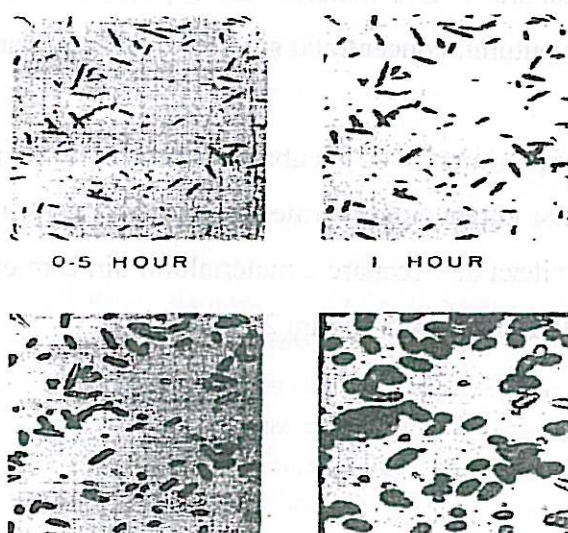


Figura 1. Urmele induse de fragmentele de fisiune în Lexan pentru diferiți timpi de decapare

a). Mecanismul de producere a craterelor (urmelor) și materiale folosite

Producerea de urme în folii se poate explica în mai multe moduri. Particula ionizantă se ciocnește cu folia unde va produce dislocări de structură. Urmând fenomenul de producere a defectelor, a urmelor, se pot observa trei modele teoretice distincte.

Primul model, așa numit „ion explosion spike”, încearcă să explice fenomenul prin faptul că particula încărcată ionizează atomii din jurul fascicolului. Se naște astfel un canal de ioni pozitivi. Norul cu densitate mare de ioni pozitivi, într-un timp scurt, se dispersează și fiecare particulă produce defecte în rețeaua cristalină. Aceste defecte se stabilizează mai repede și se măresc în dimensiune dacă se acționează cu soluții bazice de corodare. Acest model apare mai ales în cazul detectorilor cristalini sau a celor de sticlă.

Modelul „thermal spike” explică producerea craterelor prin creșterea temperaturii în jurul fascicolului de particule încărcate, iar modelul „displacement spike” explică producerea craterelor prin deplasare elastică între rețeaua cristalină și fascicolul de particule.

Printre materialele folosite ca și detectori de urme se numără: olivin, labradorit, cuarț, mica, sticla de fosfați, acetatul de celuloză, nitratul de celuloză, triacetat de celuloză, policarbonați.

b). Metodologii și proceduri de dezvoltare

Mecanismul dezvoltării și parametrii de decapare

Vizualizarea urmelor latente a particulelor încărcate poate fi simplă în principiu. Orice substanță chimică poate fi utilizată la dezvoltarea urmelor, dacă se observă o corodare a foiței iradiate în soluția substanței respective. În practică trebuie să luăm în considerare mai mulți factori pentru a obține urme clar observabile. Viteza de decapare a unui material dat depinde de: tipul de particulă, energia particulei, compoziția chimică a dizolventului, concentrația și temperatura lui, dar și de timpul în care detectorul este ținut în soluția de decapare.

Cunoașterea dependenței timpului de incubare al urmelor t_i de parametrii particulei este de o mare importanță practică, deoarece putem obține urme vizibile doar pentru timpi de decapare mai lungi decât $t_i = h_c/v_B$, unde v_B este viteza de decapare a materialului din care este confecționat detectorul de urme. Un astfel de mecanism poate fi observat în figura 2, de mai jos.

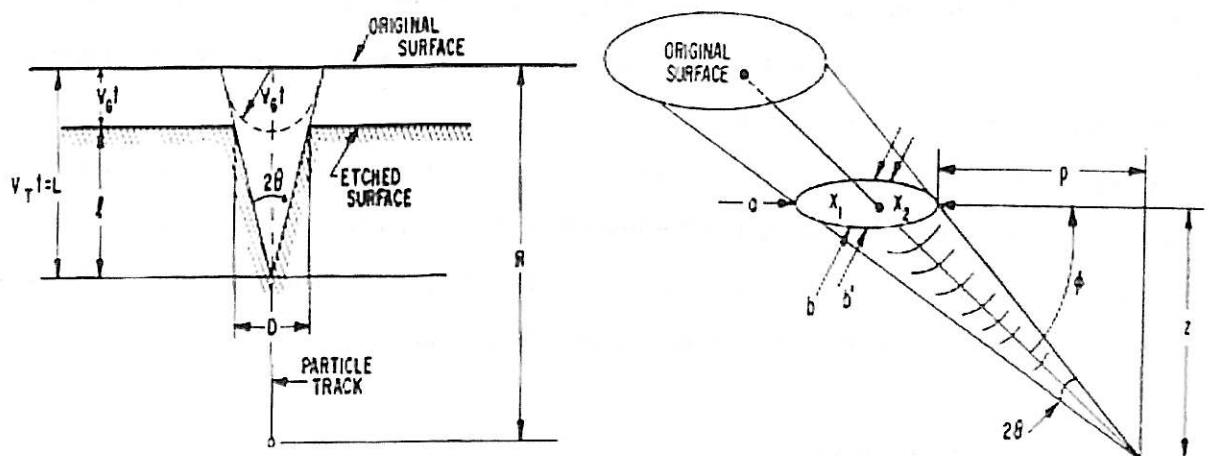


Figura 2. Formarea creterului

Developanții folosiți adesea pentru polimeri organici sunt soluțiile apoase de KOH și NaOH. Reactivitatea developanților alcalini poate fi crescută adăugând alcool la soluțiile apoase. Însă depinde și de tipul materialului folosit, existând cazuri în care viteza de developare să scadă.

Metode de developare

Metodele de developare cele mai răspândite pentru măsurarea urmelor cu un microscop sunt: developare chimică și electrochimică.

Developarea chimică este de obicei realizată într-o baie termostatică controlată, la temperaturi de 40-70°C și developarea se face în soluție apoasă de NaOH sau KOH (NaOH este cel mai folosit) la o concentrație molară de la 2-6 M. Timpul obținut de developare este între 2 și 6 ore. Prin creșterea molarității reactivului de developare, a timpului sau temperaturii se ajunge la mărimea gropii developate. Câteva exemple de materiale detectoare și caracteristicile lor pot fi observate în tabelul 1.

Tabelul 1.

Materialul (organic) detector	Concentrația soluției, temperatura și timpul de corodare sau developare
Acetat de celuloză- Triafol A	20% NaOH, 70°C, 12 min
Nitrat de celuloză	28% NaOH, 50°C, 15 min

Este important ca în camera de developare să circule curenți. Detectorii sunt scufundați în soluția de developare, unde temperatura este constantă. La sfârșitul developării, detectorii sunt scoși și spălați cu apă

pentru a îndepărta reziduurile de dezvoltare. După uscare, detectorii sunt gata de numărare sub un microscop optic. Diametrele urmelor decapate sunt de obicei de câțiva micrometri, cu toate că ele pot crește la 50 μm sau mai mult prelungind dezvoltarea.

Dezvoltarea electrochimică are ca scop mărirea gropii dezvoltate cu factor de $\sim 10^2$, astfel încât urmele să poată fi numărate cu o mărire joasă a microscopului. În cazul acesta se aplică un câmp electric înalt în fața detectorului, care se comportă ca o barieră între două părți sau compartimente dintr-un electrolit, fiecare compartiment conținând un pol a câmpului electric.

c). Numărarea urmelor la microscop

Deoarece materialele detectoare de urme sunt transparente, sistemele optice microscopice sunt cele mai ușoare și cele mai folosite în numărarea urmelor de fisiune. Majoritatea urmelor decapate chimic sunt aranjate în înălțimi mai mari de 1 μm până la 10-15 μm , de aceea microscopul poate avea o mărire de la 10x la 100x.

Abilitatea oricărui sistem de a număra densități înalte de urme depinde de puterea de dizolvare. În practică, cum densitatea urmelor crește, relația dintre densitățile reale și cele instrumentale de urme devine mai puțin liniară. Regiunea liniară poate fi extinsă prin magnificații mari, astfel îmbunătățindu-se rezoluția. Oricum, majoritatea sistemelor ar trebui să fie capabile să numere până la 1000-2000 urme/ cm^2 , fără a deveni neliniare.

3. Modul de lucru:

În vederea punerii la punct a metodei determinării urmelor de fisiune produse de neutroni, se aleg fire de uraniu metalic tăiate foarte subțiri (tip panglică) și trei folii de poliester, de triacetat de celuloză fabricate la AZOMUREȘ. Se alege o folie de culoare albastră de grosime: 178-180 micrometri și alte două folii transparente de grosime: 98-99 micrometri. Se lipește cu bandă adezivă câte un fir de uraniu metalic de folia albastră și altul pe folia transparentă, cea din urmă folie transparentă se lasă ca martor. Apoi toate cele trei folii lipite cu bandă, una peste alta se pun la iradiat în blocul de iradiere, în canalul lateral al instalației prezentate în figura 3 și 4, la un flux mixt de neutroni rapizi și lenți. Neutronii termici care ajung pe folia de uraniu metalic care conține ^{235}U (abundență naturală 0,71%), având secțiunea de captură de aproximativ 200 barni produc fisiunea. În urma captării neutronilor, nucleul compus se rupe în două fragmente cu energia totală de 200 MeV, care pătrund în folia de poliester unde produc cratera (microfisuri). Probele stau la iradiat timp de 7, respectiv 8 zile.

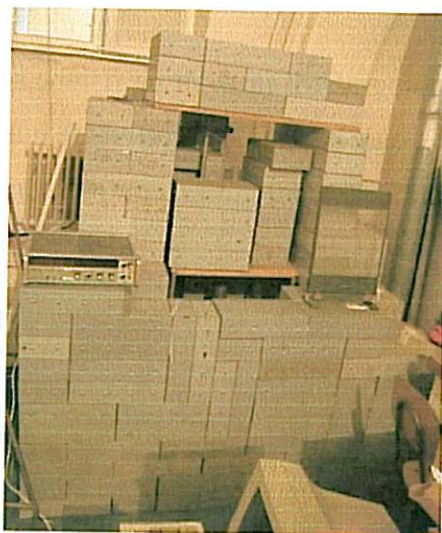


Figura 3. Blocul de iradiere al Facultății de Fizică

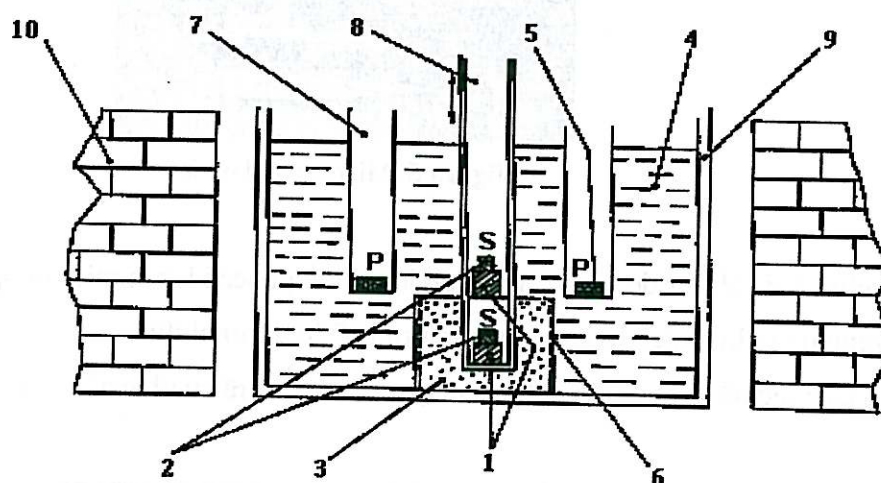


Figura 4. Blocul de iradiere conținând sursele de neutroni Am-Be și Pu-Be: 1). Sursele în poziția de stocare, 2) Sursa Pu-Be și Am-Be, 3) Parafină borată, 4) Parafină pură pentru termalizarea neutronilor, 5) Probe la iradiere, 6) Protecție din Cd, 7) Canal pentru iradiere, 8) Canal central pentru iradiere cu neutroni rapizi, 9) Pereți de protecție din Fe a ansamblului, 10) Cărămizi Parafină-Borată pentru protecție la neutroni.

După iradiere, uraniul a fost îndepărtat de pe folii, iar acestea au fost introduse într-o soluție de NaOH 20% la temperatura camerei timp de 24 de ore. La această temperatură, viteza de corodare a materialului este mică, de aceea este nevoie de un timp mai îndelungat (de 24 de ore) pentru a obține urmele de fisiune la o mărime suficient de mare pentru a putea fi observate la microscop.

După cele 24 de ore, se scot foliile din soluție și se usucă timp de câteva minute, iar apoi se pun la microscopul optic, pe rând, pentru a observa urmele lăsate în urma fisiunii uraniului.

4. Date experimentale:

În vederea vizualizării și fotografierii urmelor de fisiune se utilizează un microscop optic echipat cu cameră digitală, model Premiere, care conține 4 obiective de mărimi diferite: 4x, 10x, 40x și cu emulsie în ulei (100x) și ocularul WF 10x. Microscopul utilizat este redat în figura 5.

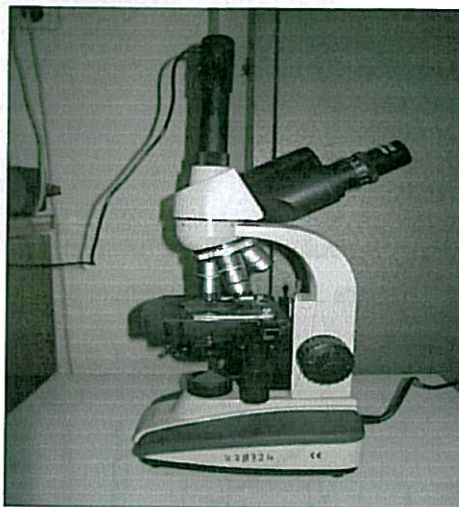


Figura 5. Microscopul optic

În urma prelucrării foliilor de triacetat de celuloză și expunerii lor la microscop s-au fotografiat câteva secvențe reprezentative din craterele provocate în urma fisiunii uraniului.

În figura 6 este redată o imagine preluată de pe folia albastră cu obiectivul de 100x.



Figura 6. Urme văzute cu obiectivul de 100x, pe folia albastră

În figura 7 se poate observa una dintre cele mai semnificative imagini preluate de pe folia transparentă pe care a fost lipit uraniuul metallic, văzută cu obiectivul de 40x, iar în figura 8 se observă urmele lasate de uraniu cu obiectivul de 100x.

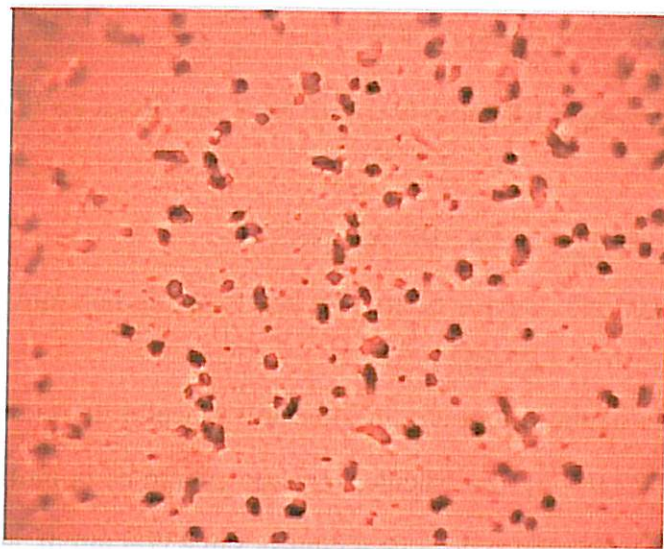


Figura 7. Urme de fisiune văzute cu obiectivul de 40x pe folia transparentă

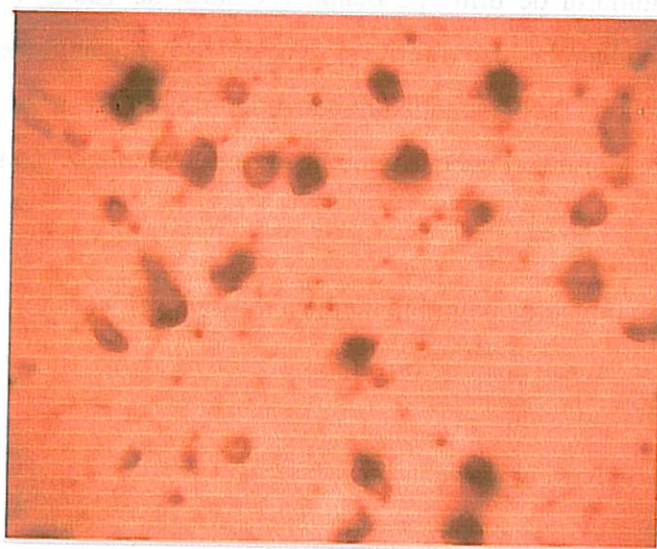


Figura 8. Urme de fisiune văzute cu obiectivul de 100x pe folia transparentă

5. Interpretarea datelor și efectuarea calculelor:

În imaginile surprinse la microscop se observă foarte multe urme (puncte) a căror număr pe unitatea de ocular este proporțional cu doza de neutroni, adică câte urme se află în imaginea respectivă, atâta doză de radiații cu neutroni lenți a primit folia de poliester în timpul de iradiere.

Observăm că urmele au formă de crater, vizibile la microscopul optic cu obiectivul de 100x.

Se poate determina și doza de radiație absorbită de folii conform unei metodologii care se bazează pe efectele produse de neutroni în urma capturărilor de către azotul din corpul uman. Debitul dozei se calculează cu formula:

$$d\left(\frac{\text{rad}}{\text{s}}\right) = \frac{1}{100} N_N \sigma_N \Phi' Q = 22,9 \frac{\mu\text{Sv}}{\text{h}}, \quad (1)$$

unde $N_N = 1,3 \cdot 10^{21} \frac{\text{nuclee}}{\text{cm}^3}$, $\sigma_N = 1,8$ barni, $Q = 0,56$ MeV, iar fluxul de neutroni din canal l-am determinat cu formula:

$$\Phi = \frac{S_n}{4\pi r^2} = 2,1 \cdot 10^5 \text{ n/s}\cdot\text{cm}^2, \quad (2)$$

în care fluența $S_n = 6,6 \cdot 10^7$ n/s, iar $r = 5$ cm. Din acest flux de neutroni, doar 60% reprezintă fluxul de neutroni termici, și anume: $\Phi' = 1,2 \cdot 10^5$ n/s·cm².

Cunoscând fluxul de neutroni termici din interiorul blocului de iradiere ($\Phi' = 1,2 \cdot 10^5$ n/s·cm²), și știind debitul dozei ($d = 22,9 \frac{\mu\text{Sv}}{\text{h}}$), din calcule, se poate estima că la un timp de iradiere de aproximativ 192 ore folia din figura 8 a absorbit o doză de 4396 μSv sau 439,6 mrem. Menționăm că doza profesională admisă este de 100 mrem/saptămână.

Se citesc de 3 ori numărul de urme pe ocular (ocularul de 100x), mutând câmpul pe regiunea de interes pentru cele 2 folii iradiate la doze diferite și se calculează valoarea medie a numărului de urme. Dacă N_1 (de pe folia transparentă) corespunde unei doze $D_1 = 4396$ μSv, atunci N_2 (de pe folia albastră) va fi numărul de urme corespunzător dozei necunoscute D_2 , care se calculează conform formulei:

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{D_1}{D_2} \quad (3)$$

Calculul erorii de citire (abaterea pătratică medie a măsurătorilor) este:

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (N_i - \bar{N})^2}{n(n-1)}} \quad (4)$$

unde n - numărul de citiri de pe acea folie;

N_i - valoarea citirilor;

\bar{N} - valoarea medie eritmetică a valorilor citite.

Rezultatul se va reda în $\bar{N} \pm \sigma$ sau eroarea relativă va fi $\epsilon = \frac{\sigma}{\bar{N}}$.

În urma calculelor se obține doza D_2 de neutroni pentru folia albastră.

Avantajul folosirii acestor detectori de urme de fisiune este posibilitatea introducerii lor în spații strâmte ale instalației de iradiere cum sunt canalele laterale (în care avem un flux maxim de neutroni termici) și unde nu pot fi introduse monitoarele electronice.