Ширманов И.А., Стругов Е.Д., Аладаилах М.В., Ташлыков О.Л., Абиалсаид М.И., Аскин А.

ОЦЕНКА ЗАЩИТНЫХ СВОЙСТВ СТЕКОЛ С ПРИМЕНЕНИЕМ ОКСИДА ГОЛЬМИЯ ОТ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ

Аннотация. Выполнена оценка радиационно-защитных параметров образцов стекла с различным соотношением оксида гольмия Ho_2O_3 с применением системы библиотек для компьютерного моделирования процессов прохождения элементарных частиц через вещество Geant4 и базы данных NIST XCOM. Представлены результаты расчетов массового коэффициента ослабления и слоя половинного ослабления для исследуемых образцов при энергии гамма-излучения, изменяющейся от 0,122 до 1,408 МэВ.

Ключевые слова: оксид гольмия, радиационная защита, массовый коэффициент ослабления, Geant4.

Abstract. The radiation-protective parameters of glass samples with different ratios of holmium oxide Ho_2O_3 were evaluated using a system of libraries for computer modeling of the processes of passage of elementary particles through the Geant4 substance and the NIST XCOM database. The results of calculations of the mass attenuation coefficient and the half-attenuation layer for the samples under study at the energy of gamma radiation varying from 0,122 to 1,408 MeV are presented.

Keywords: Holmium Oxide, Radiation Shielding, Mass Attenuation Coefficient, Geant4.

Введение

В настоящее время использование атомной энергии и ионизирующих излучений возрастает. Область применения ионизирующих излучений и номенклатура используемых радиоактивных изотопов постоянно расширяются. При этом необходимо руководствоваться основными принципами радиационной безопасности, к которым относятся принципы обоснования, нормирования и оптимизации [1].

Важную роль в снижения облучаемости человека играет экранирование источника ионизирующего излучения. В настоящее время использование экранов ограничено небольшим выбором материалов, часто не обладающих удобством использования, что затрудняет их установку и снятие. Для защиты от рентгеновского и у-излучения применяют экраны из материалов с большим атомным номером и высокой плотностью (например, железо, свинец, вольфрам). В некоторых случаев для защиты (например, рентгеновских кабинетов) используют барит. Среди традиционных защитных материалов наиболее эффективны свинец и вольфрам. Однако их стоимость требует значительна. Высокая пластичность решения весьма сложных конструкционных задач при креплении листового свинца толщиной более 5 мм в вертикальном положении [2].

Реализация принципа оптимизации в радиологической защите персонала

возможна по многим направлениям [3], в том числе значительный потенциал имеет оптимизация состава радиационно-защитных материалов [4], [5]. Это связано со значительной долей биологической защиты в стоимости объекта использования атомной энергии (радиационно-опасного объекта).

Среди используемых защитных материалов особое место занимают стекла, являющиеся обязательным конструкционным элементом в составе некоторых помещений, где требуется визуальный контроль выполняемых внутри работ. Несмотря на то, что работы по созданию радиационно-защитных стекол велись с начала освоения энергии атома и использования ионизирующих излучений [6], в последние годы интерес к ним возрос. Это связано с поиском новых перспективных составов стекол, оценкой возможности исключения свинца из их состава.

При выборе материала стекол для радиационной защиты с возможностью использования в качестве смотрового окна необходимо учитывать три фактора: окраску самого стекла, окраску вызванную гамма-излучением и устойчивость этой приобретенной окраски при комнатной температуре. В настоящее время разработано несколько различных типов стекол для таких защитных окон, например свинцовые стекла, которые имеют хорошие экранирующие способности.

Целью данной работы является определения характеристик радиационнозащитных стекол типа 85TeO₂-(15-у)Bi₂O₃-уHo₂O₃, где у=(0; 0, 1; 0, 2; 0, 3; 0, 4; 0, 5 мол.%) при различном массовом составе оксидов гольмия для защиты от гамма-излучения [7]. Для этого были рассчитаны параметры экранирования излучения, такие как массовый коэффициент ослабления μ_m (MAC – mass attenuation coefficient), линейный коэффициент ослабления μ (LAC – linear attenuation coefficient), слой половинного ослабления $\Delta_{0,5}$ (HVL – half value layer), средняя длина свободного пробега (MFP – mean free path), эффективный атомный номер (Z_{eff} – effective atomic number) в диапазоне энергий 0,122–1,408 МэВ. Исследование параметров экранирования стекла под влиянием гамма-излучения проводилось с использованием базы данных NIST XCOM и имитационного кода Монте-Карло Geant4.

Материалы и методика эксперимента

В данной работе рассматриваются стекла с различным содержанием составных компонентов 85TeO_2 -(15-у) Bi_2O_3 -у Ho_2O_3 , где у = (0; 0,1; 0,2; 0,3; 0,4; 0,5 мол.%) Данные по химическому составу образцов стекол для оценки их радиационно-защитных характеристик взяты из работы [7] и представлены в табл. 1.

Химический состав каждого образца (мол.%)				
Образец	Te	Bi	Но	0
S1	0,45560	0,38584	0	0,15856
S2	0,45585	0,38347	0,00203	0,15865
S3	0,45609	0,38111	0,00407	0,15873
S4	0,45634	0,37874	0,00610	0,15882
S5	0,45659	0,37637	0,00814	0,15891
S6	0,45684	0,37390	0,01018	0,15890

Таблица 1-Химический состав исследуемых образцов стекол

Geant4-это платформа моделирования процессов прохождения элементарных частиц через вещество на основе кода Монте-Карло. Он используется во многих областях, связанных с использованием ядерной энергии и т. д. [8]. В данной работе Geant4 использовался для моделирования прохождения гамма-лучей через исследуемые образцы стекол: S1, S2, S3, S4, S5 и S6. Для достижения поставленной задачи потребовалось построить точную трехмерную модель (рис. 1). Детектор и гамма-источник были помещены в два отдельных цилиндрических свинцовых экрана, каждый экран имеет отверстие диаметром 3 мм в центре щита. Был создан узкий пучок гамма-лучей для проверки закона Бира-Ламберта, который использовался для расчета коэффициентов массового ослабления. При каждой выбранной энергии моделирование сначала проводилось без образца стекла, расположенного между источником и детектором, чтобы оценить интенсивность Затем моделирование было произведено заново со падающего фотона (I_0) . стеклянным материалом, помещенным на путях фотонного пучка, для получения интенсивности ослабленного фотона (1).



Рисунок 1-Имитационная геометрия Geant4

Массовый коэффициент ослабления и линейный коэффициент ослабления являются основными параметрами защиты, они используются для оценки способности исследуемых композитов ослаблять падающее гамма-излучение и определяются следующими уравнениями (1) и (2):

$$\mu_{\rm m} = \frac{\mu}{\rho} \sum_{i} w_i \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i \tag{1}$$

где $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i$ — массовый коэффициент ослабления *i*-го составного элемента, w_{i-} массовая доля *i* – го составного элемента.

$$\mu = -\frac{1}{x} \ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \tag{2}$$

где I_0 – интенсивность радиоактивного источника без экранирующего материала, I – интенсивность радиоактивного источника с экранирующим материалом, х – толщина экранирующего поглотителя (см).

Слой половинного ослабления ($\Delta_{0,5}$) представляет собой необходимую толщину экранирующего материала для уменьшения интенсивности излучения до половины от его начального значения [9]. Слой половинного ослабления (HVL) и средняя длина свободного пробега (MFP) рассчитываются с использованием линейного коэффициента ослабления, как указано в уравнениях 3, 4 соответственно [10]:

$$HVL = \frac{ln2}{\mu}$$
(3)

$$MFP = \frac{1}{\mu}$$
(4)

где µ – линейный коэффициент ослабления.

Эффективный атомный номер (Z_{eff}) был вычислен с помощью уравнения (5) следующим образом [11]:

$$Z_{eff} = \frac{\sum_{i} f_{i} A_{i}(\mu_{\rm m})_{i}}{\sum_{j} \frac{A_{j}}{Z_{j}}(\mu_{\rm m})_{j}}$$
(5)

где A_i – атомная масса *i*-го составного элемента, f_i – массовую долю *i*-го элемента, Z_i – атомный номер *i*-го элемента, $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i$ – массовый коэффициент ослабления *i*-го составного элемента образца стекла соответственно.

Аналогично, эффективная электронная плотность вычисляется с помощью уравнения (6), основанного на уравнении (5):

$$N_{eff} = N_a \frac{Z_{eff}}{\langle A \rangle} \tag{6}$$

где < $A >= \sum_i A_i f_i$ – средняя атомная масса, N_a – число Авогадро.

Результаты и обсуждение

Значения коэффициентов массового ослабления для теллурито-висмутого стекла с добавлением оксидов гольмия 85TeO₂-(15-у)Bi₂O₃-уHo₂O₃, y=(0; 0, 1; 0, 2; 0, 3; 0, 4; 0, 5 мол.%) были смоделированы с использованием расчетного кода Geant4. Коэффициенты массового ослабления определены с помощью Geant4 и базы данных NIST XCOM для исследуемых стекол S1-S6 в диапазоне энергий от 0,122 до 1,408 МэВ (рис. 2, *a*). Образец стекла S1 с наибольшим содержанием Bi₂O₃ имеет максимальное значение коэффициенты массового ослабления, полученные с помощью Geant4, показали, что по мере уменьшения массовых долей Bi₂O₃ их значения изменяются от 1,699 до 1,665 см²/г. При энергиях излучения выше 0,122-0,344 МэВ наблюдается резкое снижение значений μ_m из-за проявления комптоновского рассеяния. Смоделированные значения коэффициента массового ослабления выше отоновского рассеяния. Смоделированные значения коэффициента массового ослабления образцов стекла становятся постоянными при изменении энергии в пределах от 0,662 до 1,408 МэВ, что может быть связано с доминирующим процессом образования пар [12].

Значения линейных коэффициентов ослабления (μ) для висмут-теллуритового стекла с добавлением оксидов гольмия были рассчитаны на основе смоделированных массовых коэффициентов ослабления с использованием кода Geant4, а также рассчитаны теоретически с использованием имеющейся базы данных NIST XCOM (рис. 2, δ). Дальнейшее увеличение энергии падающего гамма-излучения приводит к быстрому снижению линейного коэффициента ослабления из-за фотоэлектрического взаимодействия. По результатам исследований наибольшее значение линейного коэффициента ослабления наблюдается в диапазоне энергий от 0,122 до 1,408 МэВ получено для образца S1 (содержание Bi₂O₃ 15 масс.%).

Значения эффективного атомного номера (Z_{eff}) были рассчитаны для исследуемых стекол с помощью доступного онлайн-программного обеспечения PHY-X. Полученные значения эффективного атомного номера приведены на (рис. 3, *a*). Более высокие значения эффективного атомного номера при низкой энергии обусловлены фотоэлектрическим взаимодействием, которое преобладает в низкоэнергетической области. Образец стекла S1 имеет наибольшее значение эффективного атомного номера при низкой соминирующим фотоэлектрическим взаимодействием в этой области и изменяется как E^{-3.5}. Однако образец стекла S6 с содержанием (14.5 моль%) Bi₂O₃ и самое высокое содержание (0.5 моль%) Ho₂O₃ имеет минимальное значение эффективного атомного номера при увеличении энергии связано с обратной высокой энергии фотона 1,408 МэВ. Резкое уменьшение значений эффективных атомных номеров при увеличении энергии связано с обратной пропорциональностью между комптоновским рассеянием и E⁻¹ [13].

302

Эффективная электронная плотность также рассчитывалась с помощью программного обеспечения РНҮ-Х. Полученные значения представлены на (рис. 3, б). Согласно (рис. 3, б) эффективная электронная плотность показывает то же поведение, что и значения эффективного атомного номера.



Рисунок 2 – Защитные характеристики образов стекол S1-S6: *а* – массовый коэффициент ослабления; *б* – линейный коэффициент ослабления; *в* – слой половинного ослабления; *г* – средний свободный путь



Рисунок 3 – Эффективный атомный номер (*a*) и эффективная электронная плотность (б) исследуемых образцов стекол

Важно знать оптимальную толщину стекол, при которой происходит поглощение или уменьшение интенсивности падающих фотонов. В работе были рассчитаны эффективные параметры экранирования, такие как слой половинного ослабления и средняя длина свободного пробега. Оба этих параметра были рассчитаны на основе линейных коэффициентов ослабления и представлены на рис. 2. Слой половинного ослабления является основным параметром, который указывает на необходимую толщину материала для снижения уровня излучения на половину [14]. Из (рис. 2, в) видно, что значения слоя половинного ослабления увеличиваются по мере увеличения энергии фотонов. Наименьшее значение слоя половинного ослабления наблюдается в зоне низких энергий до 0,24 МэВ, а резкое увеличение слоя половинного ослабления наблюдается при энергиях от 0,245 до 1,408 МэВ, это связано с обратной пропорциональностью между $\Delta_{0.5}$ и линейным коэффициентом ослабления. На (рис. 2, г) показана средняя длина свободного пробега в зависимости от энергии фотона. Полученные данные средней длины свободного пробега имеют небольшие значения в зоне энергии фотонов от 0,122 до 0,344 МэВ для всех образцов стекла. Полученные результаты показывают, что наименьшее значение средней длины свободного пробега имеет образец стекла 85TeO₂-15Bi₂O₃, который имеет наибольшую концентрацию Bi₂O₃.

Таким образом, из всех исследуемых образцов стекол, образец S1 с общей формулой 85TeO₂-15Bi₂O₃ имеет самый высокий коэффициент массового ослабления, самое низкое значение слоя половинного ослабления, а так же значение средней длины свободного пробега. Исходя из полученных данных, следует вывод, что образец стекла S1 обладает наилучшими радиационно-защитными свойствами, по сравнению с другими исследуемыми образцами стекол.

Заключение

С помощью базы данных XCOM и расчетного кода Geant4 в диапазоне энергий от 0,122 до 1,408 МэВ были оценены радиационные защитные свойства теллуритовисмутого стекла с добавлением оксидов гольмия $85TeO_2$ -(15-y)Bi₂O₃-yHo₂O₃, y=(0; 0,1; 0,2; 0,3; 0,4; 0,5 мол.%). Рассчитанные параметры радиационной защиты. Массовый коэффициент ослабления и линейный коэффициент ослабления всех исследуемых стекол (S1-S6) уменьшаются по мере увеличения энергии фотонов. Образец стекла S1 с наибольшим содержанием Bi₂O₃ имеет максимальное значение коэффициента массового ослабления на всем диапазоне энергий от 0,122 до 1,408 МэВ и колеблется от 1,699 см²/г до 0,0511 см²/г. Аналогично можно сказать и про линейный коэффициент ослабления, который имеет максимальное значение у образца стекла S1.

Слой половинного ослабления и средняя длина свободного пробега увеличивается по мере увеличения энергии фотонов. Наилучшие показатели по данным характеристикам имеет образец стекла S1, значения которого равны 2,197 см для слоя половинного ослабления и 3,170 см для средней длины свободного пробега при энергии 1,408 МэВ.

Результаты показали эффективность добавления Bi₂O₃ при минимальном содержании оксида гольмия. Добавление Bi₂O₃ в состав стекол имеет тенденцию к улучшению экранирующих свойств стекла против гамма-излучения. Среди исследуемых теллурито-висмутовых стекол образец S1 с содержанием Bi₂O₃ (15 мол.%) обладает наилучшими радиационно-защитными свойствами.

Исследование стекол в качестве радиационной защиты является весьма перспективным мероприятием и будет продолжено в дальнейшем.

Библиографический список

- 1. Новиков Г. А. Обеспечение безопасности в области использования атомной энергии : учебник / Г. А. Новиков, О. Л. Ташлыков, С. Е. Щеклеин. Екатеринбург : Изд-во Урал. ун-та, 2017. 552 с. ISBN 978-5-7996-2125-4.
- 2. Оптимизация состава радиационной защиты / О. Л. Ташлыков, С. Е. Щеклеин, В. Ю. Лукьяненко [и др.] // Известия высших учебных заведений. Ядерная энергетика. 2015. № 4. С. 36–42.
- 3. Михайлова А. Ф. Пути реализации принципа оптимизации в радиологической защите персонала / А. Ф. Михайлова, О. Л. Ташлыков // Ядерная физика и инжиниринг. 2018. Т. 9, № 4. С. 393–401.
- 4. Оптимизация состава гомогенных радиационно-защитных материалов применительно к планируемым условиям облучения / О. Л. Ташлыков, С. Е. Щеклеин, И. М. Русских [и др.] // Атомная энергия. 2016. Т. 121, № 4. С. 233–236.
- 5. Экспериментально-теоретическое исследование органометаллических радиационно-защитных материалов, адаптированных к источникам излучения со

сложным изотопным составом / И. М. Русских, Е. Н. Селезнев, О. Л. Ташлыков, С. Е. Щеклеин // Ядерная физика и инжиниринг. – 2014. – Т. 5, № 5. – С. 449–455.

- 6. Стефенсон Р. Введение в ядерную технику / Р. Стефенсон. Москва : Гос. изд-во техн.-теорет. лит., 1956. 494 с.
- 7. Optical properties of bismuth tellurite glasses doped with holmium oxide / C. Devaraja, G. V. Jagadeesha, B. Eraiah [et al.] // Ceramics International. 2021. Vol. 47, Iss. 6. P. 7602–7607.
- GEANT4-a simulation toolkit/S. Agostinelli, J. R. Allison, K. Amako [et al.]// Nuclear instruments and methods in physics research section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 2003. – Vol. 506, Iss. 3. – P. 250–303. – URL: https://geant4.web.cern.ch/ (date of access: 05.06.2020).
- Photon cross-section measurements at low energies in some bromides / A. T. L. Tan, V. Lakshminarayana, I. S. Giles, A. Rajaratnam // Il Nuovo Cimento A. – 1988. – Vol. 99, Iss. 5. – P. 587–594.
- 10. Машкович В. П. Защита от ионизирующих излучений / В. П. Машкович, А. В. Кудрявцева. Москва : Энергоатомиздат, 1995. 495 с.
- 11.Спайерс В. Эффективный атомный номер и поглощение энергии в тканях / В. Спайерс // Британский журнал радиологии. 1946. Vol. 19. Р. 52–63. URL: https://ru.qaz.wiki/wiki/Effective_atomic_number (date of access: 13.01.2021).
- 12.Chanthima N. Study of photon interactions and shielding properties of silicate glasses containing Bi₂O₃, BaO and PbO in the energy region of 1 keV to 100 GeV / N. Chanthima, J. Kaewkhao, P. Limsuwan // Annals of Nuclear Energy. 2012. Vol. 41. P. 119–124.
- 13. The radiation-shielding properties of ternary SiO₂–SnO–SnF₂ glasses: simulation and theoretical study / F. I. El-Agawany, O. L. Tashlykov, K. A. Mahmoud, Y. Rammah // Ceramics International. 2020. Vol. 46, Iss. 15. P. 23369–23378.
- 14.Calculation of gamma-ray attenuation parameters for locally developed shielding material / R. Biswas, H. Sahadath, A. S. Mollah, Md. F. Hug // Journal of Radiation Research and Applied Sciences. 2016. Vol. 9, Iss. 1. P. 26–34.