

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ МЕТРОЛОГИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК НОВЫХ ДОЗИМЕТРИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ НА ОСНОВЕ АРОМАТИЧЕСКИХ АМИНОВ И ТЕТРАБРОММЕТАНА

О. С. Кротова, А. В. Грунин, О. В. Корочкина, С. А. Лазарев, А. М. Молитвин, Д. В. Ткачук

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», г. Саров Нижегородской обл.

В РФЯЦ-ВНИИЭФ для дозиметрического сопровождения радиационных исследований на моделирующих установках (МУ) широко применяются метод ЦДП (цветовых дозиметров пленочных) и радиотермолюминесцентный (РТЛ) метод дозиметрии ИКС (индивидуального контроля с помощью стекол) с детекторами на основе алюмофосфатного стекла ИС-7 [1].

Современные пленочные дозиметрические материалы обладают сравнительно низкой чувствительностью, поэтому повышенный интерес к ним проявляется только в области высоких поглощенных доз 10^3 – 10^6 Гр. Следует отметить целый ряд их положительных свойств: независимость показаний дозы от мощности дозы, высокая механическая прочность, малые размеры. Распространенные в настоящее время ЦДП позволяют определять величину поглощенной дозы ИИ в поликарбонатной пленке в диапазоне от 10^3 до $2,0 \cdot 10^5$ Гр [2, 3].

Цветовые и «окрашиваемые» пленки, в отличие от термолюминесцентных детекторов, предоставляют возможность многократного съема информации о поглощенной дозе, в течение длительного времени, в то время как случайные сбои при работе дозиметрических приборов (ИКС-А, АИСТ-5М) или ошибки оператора из-за однократного съема информации могут привести к потере информации о дозе ионизирующего излучения (ИИ). В связи с этим актуальна разработка пленочных дозиметров для диапазона поглощенных доз ИИ от 10 до $3 \cdot 10^3$ Гр. Не только сохранность информации по дозе важна при испытаниях, но и возможность размещения сравнительно тонкой диэлектрической пленки в недоступных для многих других детекторов контролируемых позициях в радиоэлектронных приборах.

Ранее в работе [4] сообщалось о результатах исследований дозиметрических материалов на основе ароматических аминов и тетрабромметана [5], разработанных в филиале НИФХИ им. Л. Я. Карпова в 2008 и 2009 годах.

Цель настоящей работы: исследование метрологических характеристик новых партий дозиметрических материалов на основе ароматических аминов и тетрабромметана с нанесенным на них, для стабилизации свойств, слоем поливинилового спирта (ПВС) и определение области их практического использования для измерения поглощенных доз ионизирующих излучений.

Объекты исследований – образцы дозиметрических материалов на основе ароматических аминов и тетрабромметана размером (12×30) мм², толщиной 40 и 115 мкм, приготовленные в виде пленок из раствора в дихлорэтаноле ПВХ с добавками ароматического амина Ам и $СВr_4$ с последующим нанесением слоя ПВС толщиной 5–10 мкм.

Дозиметрические пленки разработаны в филиале НИФХИ им. Л. Я. Карпова. Данные по трем партиям образцов дозиметрических пленок со слоем ПВС представлены в табл. 1. Здесь же представлены результаты предварительной градуировки дозиметрического материала (определение зависимости оптической плотности A на длине волны 620 и 625 нм от поглощенной дозы D), проводившейся в филиале НИФХИ им. Л. Я. Карпова спектрофотометрическим методом в полосе поглощения окисленного амина Ам⁺ (катиона красителя – гидрола Михлера), с использованием спектрофотометра Unicam-SP700.

Таблица 1

Данные по трем партиям образцов дозиметрических пленок со слоем ПВС

№ партии	Толщина пленки h , мкм	Концентрация примесей C , моль/л	Диапазон измеряемых доз D , Гр	Градуировочные кривые, полученные на установке РХ-ГАММА-30 (без дополнительного окружения)
1	115±5	0,02	200–1000	$A = 0,0021D - 3,35$ ($200 \text{ Гр} \leq D \leq 1000 \text{ Гр}$)
2	40±3	0,1	600–3000	$A = \omega 1,1510^{-3} D^{3/2} + \delta (0,05 D^{1/2} - 0,195)$ ($\omega = 1, \delta = 0$ при $D \leq 1600 \text{ Гр}$, $\omega = 0, \delta = 1$ при $D > 1600 \text{ Гр}$)
3	115±5	0,25	50–250	$A = 0,00099 D^{4/3}$ ($50 \text{ Гр} \leq D \leq 250 \text{ Гр}$)

Образцы дозиметрических пленок облучали на радиоизотопной гамма-установке РХ-ГАММА-30 («Исследователь») при комнатной температуре и мощности поглощенной дозы 0,14 Гр/с.

Дозиметрические пленки обладают различными исходными характеристиками: толщиной, концентрацией примесей и, как следствие, различными радиационной чувствительностью и диапазоном измеряемых поглощенных доз. Необходимо отметить, что в дозиметрических пленках из партий № 1 и 2, предназначенных для измерения поглощенных доз в диапазонах от 200 до 1000 Гр и от 600 до 3000 Гр, со сравнительно малой концентрацией примесей, при воздействии ИИ цепные реакции не идут. В дозиметрических пленках из партии № 3 со значительно более высокой концентрацией примесей, обладающих высокой чувствительностью к ИИ и предназначенных для измерения поглощенных доз в диапазоне от 50 до 250 Гр, при воздействии ИИ происходят цепные реакции.

Исследования метрологических характеристик дозиметрических материалов на основе ароматических аминов и тетрабромметана в РФЯЦ-ВНИИЭФ проводились на изотопной установке ЭТАЛОН-3 [6] с нуклидом ^{60}Co из состава вторичного эталона ВЭТ 8-12-91 и в поле тормозного излучения (ТИ) МУ ЛИУ-30 [7].

В ходе исследований метрологических характеристик дозиметрических материалов в РФЯЦ-ВНИИЭФ было необходимо:

- оценить работоспособность исследуемых образцов в условиях воздействия гамма-излучения изотопной установки ЭТАЛОН-3 и высокоинтенсивного импульсного тормозного излучения (ТИ) МУ ЛИУ-30;
- получить зависимость оптической плотности A дозиметрического материала (пленок) от времени t после облучения;
- провести градуировку дозиметрических пленок и получить зависимости оптической плотности A пленок от поглощенной дозы ИИ.

Измерения оптической плотности A дозиметрических пленок ($A = \lg(I_0/I)$), I_0 – интенсивность излучения, падающего на поглощающую среду, I – интенсивность излучения, прошедшего через среду) проводились на спектрофотометре Genesys 6. Систематическая погрешность измерения оптической плотности на спектрофотометре Genesys 6 – 0,5 %, диапазон длин волн светового излучения – 190–1100 нм, точность установки длины волны – $\pm 1,0$ нм. Возможна одновременная работа сразу с пятью образцами пленок. Измерения оптической плотности пленок после облучения проводились автоматически с периодичностью 5 мин.

Для расчетно-методического сопровождения экспериментальных исследований использовались программы ТРИАДА [8] и ЭЛИЗА [9].

В качестве оптимального окружения дозиметрических пленок для спектра гамма-излучения установки ЭТАЛОН-3 использовались алюминиевые пластины толщиной 2 мм (с фронтальной и тыльной сторон). Энергетическая зависимость поглощенной дозы в пленке (при таком окружении) по отношению к поглощенной дозе в воздухе и кремнии в зависимости от энергии воздействующего гамма-кванта представлена на рис. 1.

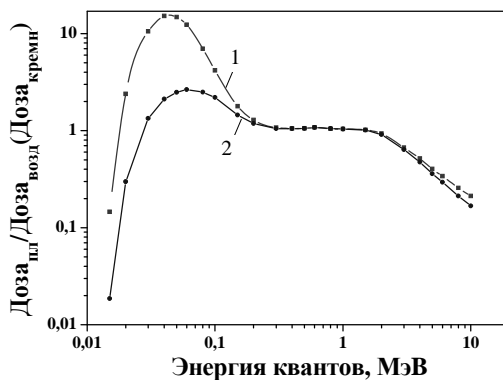


Рис. 1. Энергетическая зависимость поглощенной дозы в пленке по отношению к поглощенной дозе в воздухе и кремнии при окружении пленки алюминиевыми пластинами толщиной 2 мм: 1 – $\text{доза}_{\text{пл.}}/\text{доза}_{\text{возд.}}$; 2 – $\text{доза}_{\text{пл.}}/\text{доза}_{\text{Si}}$

Подготовку пленок к экспериментам осуществляли без влияния белого света.

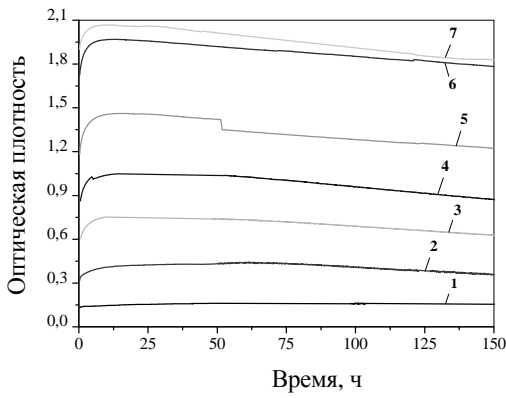
Облучение дозиметрических пленок на установке ЭТАЛОН-3 проводили на воздухе при комнатной температуре. Время облучения изменялось в зависимости от требуемой величины поглощенной дозы в пленке в диапазоне от 0,5 до 30 ч при мощности экспозиционной дозы гамма-излучения 10,7 и 4,6 Р/с. Расчет поглощенных доз в дозиметрических пленках производился на основе численной модели поля излучения изотопной установки ЭТАЛОН-3, методом Монте-Карло [10].

Поглощенная в дозиметрических пленках доза ТИ МУ ЛИУ-30 составила 20–400 Гр при длительности импульса на половине высоты $\tau_{0,5} \approx 20$ нс. Для измерения поглощенной в пленках дозы ТИ МУ ЛИУ-30 использовалась система, состоящая из двух компенсирующих алюминиевых фильтров толщиной 6 и 0,4 см (с фронтальной и тыльной сторон, соответственно) и чередующихся, размещенных между ними, градуируемых дозиметров (рабочих тел интегральных дозиметров) и детекторов с диэлектрическим рассеивателем [11].

Результаты исследований представлены на рис. 2, 3 и 4 – для первой, второй и третьей партии дозиметров, соответственно.

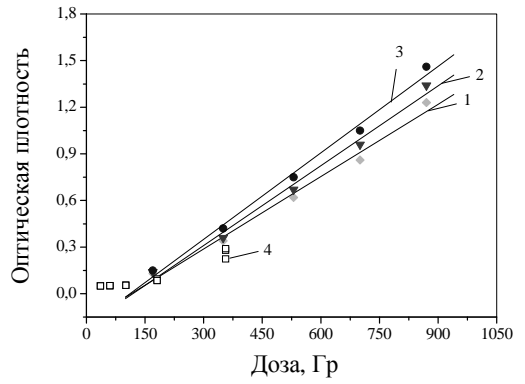
На кривых кинетики оптической плотности дозиметрических пленок из партий № 1 и 2 после облучения на установке ЭТАЛОН-3 можно выделить начальный участок длительностью от 1 до 50 ч, соответствующий переходным процессам в дозиметрах, после чего их показания относительно стабильны: за трое суток изменения составили от 1 до 20 %. Изменение оптической плотности дозиметров из партии № 3 происходит относительно быстро, что может быть связано с влиянием окружающей среды (изменением температуры, влажности и т. п.) и требует дальнейших исследований.

Зависимость оптической плотности пленок от поглощенной дозы при воздействии гамма-излучения изотопной установки ЭТАЛОН-3 имеет линейный характер $A = KD + B$, $[D]$ – Гр, параметры K и B для различных моментов времени t снятия показаний облученных дозиметров представлены в табл. 2.



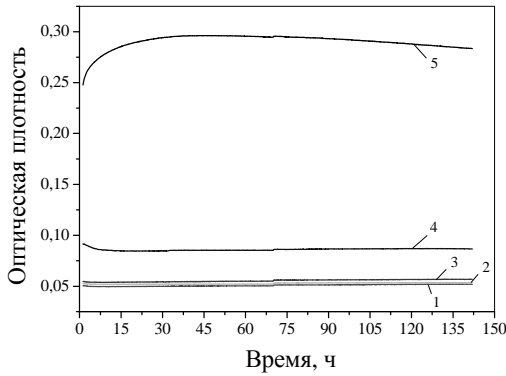
а

1 – 180 Гр; 2 – 350 Гр; 3 – 530 Гр; 4 – 700 Гр;
5 – 870 Гр; 6 – 1800 Гр; 7 – 2600 Гр



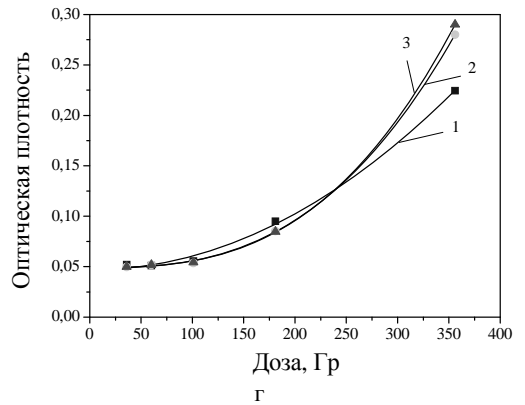
б

1 – $t = 20$ ч; 2 – $t = 2$ ч; 3 – $t = 0,5$ ч; 4 – ЛИУ-30



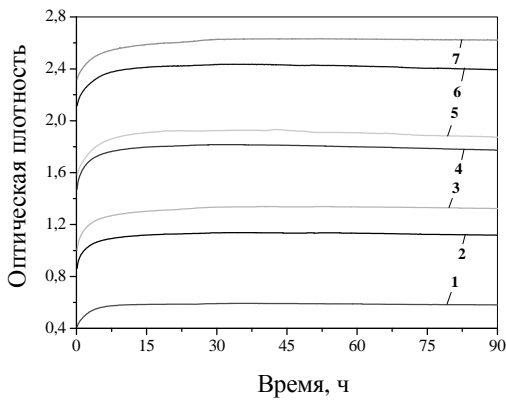
в

1 – 36 Гр; 2 – 60 Гр; 3 – 100 Гр; 4 – 180 Гр; 5 – 360 Гр



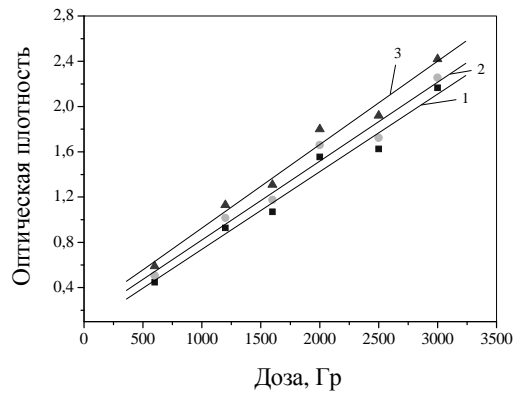
1 – $t = 0$ ч; 2 – $t = 10$ ч; 3 – $t = 20$ ч

Рис. 2. Результаты исследований дозиметрических пленок со слоем ПВС, предназначенных для измерения поглощенных доз в диапазоне от 200 Гр до 1 кГр: а, б – ЭТАЛОН-3; в, г – ЛИУ-30



а

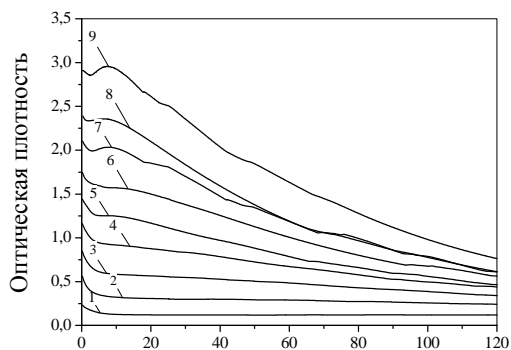
1 – 600 Гр; 2 – 1200 Гр; 3 – 1600 Гр; 4 – 2000 Гр;
5 – 2500 Гр; 6 – 3000 Гр; 7 – 4000 Гр



б

1 – $t = 0,5$ ч; 2 – $t = 2$ ч; 3 – $t = 20$ ч

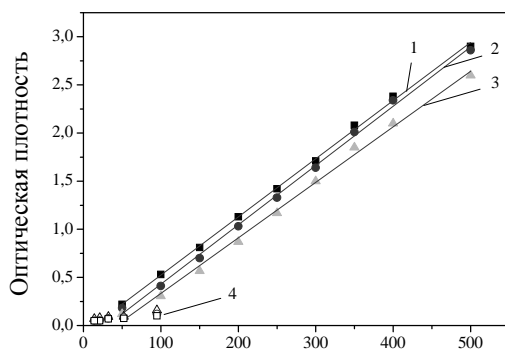
Рис. 3. Результаты исследований дозиметрических пленок со слоем ПВС, предназначенных для измерения поглощенных доз в диапазоне от 600 Гр до 3 кГр при воздействии гамма-излучения изотопной установки ЭТАЛОН-3



Время, ч

а

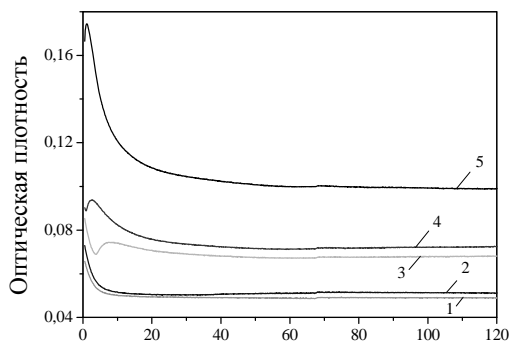
1 – 50 Гр; 2 – 100 Гр; 3 – 150 Гр; 4 – 200 Гр; 5 – 250 Гр;
6 – 300 Гр; 7 – 350 Гр; 8 – 400 Гр; 9 – 500 Гр



Доза, Гр

б

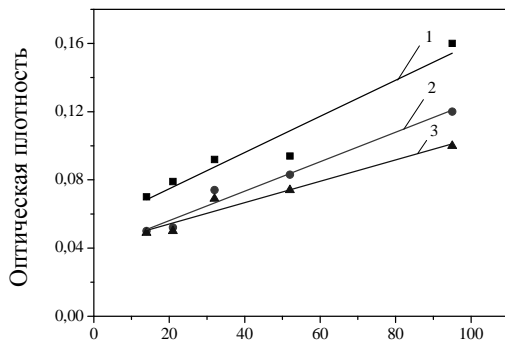
1 – $t = 0,5$ ч; 2 – $t = 2$ ч; 3 – $t = 20$ ч; 4 – ЛИУ-30



Время, ч

в

1 – 17 Гр; 2 – 25 Гр; 3 – 37 Гр; 4 – 58 Гр; 5 – 96 Гр



Доза, Гр

г

1 – $t = 0$ ч; 2 – $t = 10$ ч; 3 – $t = 30$ ч

Рис. 4. Результаты исследований дозиметрических пленок со слоем ПВС, предназначенных для измерения поглощенных доз в диапазоне от 50 до 250 Гр: а, б – ЭТАЛОН-3; в, г – ЛИУ-30

Таблица 2

Параметры линейной аппроксимации показаний дозиметров через 0,5, 2, 20 ч после облучения

№ партии дозиметров	Параметры	Значения параметров для моментов времени t после облучения		
		$t = 0,5$ ч	$t = 2$ ч	$t = 20$ ч
1	K	$(16 \pm 1) \cdot 10^{-4}$	$(17 \pm 1) \cdot 10^{-4}$	$(19 \pm 1) \cdot 10^{-4}$
	B	$-(0,18 \pm 0,06)$	$-(0,20 \pm 0,06)$	$-(0,21 \pm 0,05)$
2	K	$(7 \pm 1) \cdot 10^{-4}$	$(7 \pm 1) \cdot 10^{-4}$	$(7 \pm 1) \cdot 10^{-4}$
	B	$0,05 \pm 0,11$	$0,12 \pm 0,11$	$0,2 \pm 0,1$
3	K	$(61 \pm 1) \cdot 10^{-4}$	$(62 \pm 1) \cdot 10^{-4}$	$(58 \pm 1) \cdot 10^{-4}$
	B	$-(0,08 \pm 0,02)$	$-(0,18 \pm 0,03)$	$-(0,24 \pm 0,04)$

Поглощенные дозы в дозиметрических пленках из партий 1 и 3 частично находятся ниже рекомендованного производителем диапазона, и полученная зависимость показаний от дозы имеет нелинейный характер.

Сравнение экспериментальных данных, полученных при одинаковой поглощенной дозе в импульсном и статическом режимах, показывает некоторые отличия как в кинетике показаний дозиметров после облучения, так и в величине радиационной реакции. Это может быть связано как с погрешностью регистрации поглощенной дозы при импульсном облучении, так и с неконтролируемым влиянием факторов окружающей среды. Однако наиболее вероятным представляется влияние кратковременного, по сравнению со временем протекания переходных процессов в материале дозиметра, характера воздействия.

Заключение

Исследованные опытные партии образцов дозиметрических пленок с нанесенным на них слоем ПВС обладают достаточно высокой радиационной чувствительностью и стабильностью показаний во времени, что дает возможность применения данных материалов в составе пленочных дозиметров для измерения поглощенных доз гамма-излучения в диапазоне от 50 Гр до 3 кГр.

Показано, что кривые фединга и величина радиационной реакции дозиметрических пленок отличаются при статическом и импульсном облучении (длительность импульса на половине высоты ≈ 20 нс). Это может быть следствием того, что время облучения в статическом режиме и характерное время протекания переходных процессов в пленочных дозиметрах сравнимы по величине: $\approx 1 - 10$ ч, – а также влиянием не контролировавшихся характеристик окружающей среды на изменение характеристик дозиметров.

Для более корректных измерений поглощенной дозы в условиях воздействия ТИ наносекундной длительности и увеличения точности измерений требуется дальнейшая отработка имеющихся методов градуировки дозиметров в поле импульсного ионизирующего излучения с помощью детекторов-компараторов – калориметров, детекторов с диэлектрическим рассеивателем и др. [12] либо, при возможности, модификация дозиметрического материала для уменьшения (исключения) зависимости показаний пленочного дозиметра от мощности поглощенной дозы.

Литература

1. Бочвар И. А., Гимадова Т. И., Кеирим-Мааркус И. Б. и др. Метод дозиметрии ИКС. М.: Атомиздат, 1977.

2. Пудов В. П., Генералова В. В., Громов А. А. Дозиметрия электронных пучков с помощью стандартных образцов поглощенной дозы СО ПД(Ф)Р-5/50 // Сб. докл. VII Межотраслевой конф. по радиационной стойкости. Снежинск: РФЯЦ-ВНИИТФ, 2006. С. 368–372.

3. Обеспечение единства измерений в радиационных технологиях / Под общей ред. П. А. Красовского. Менделеево: ВНИИФТРИ, 2007.

4. Горностай-Польский С. А., Грицына В. П., Грунин А. В. и др. Результаты исследований характеристик новых дозиметрических материалов на основе ароматических аминов и тетрабромметана для измерения поглощенных доз ионизирующих излучений в диапазоне от 50 Гр до 1 кГр // Сб. докл. IX Межотраслевой конф. по радиационной стойкости. Снежинск, 12–15 октября 2010 г. Снежинск: РФЯЦ-ВНИИТФ, 2011. С. 225–231.

5. Коллинов О. В., Колесникова В. В., Шаварин Ю. Я. Высококочувствительный пленочный дозиметрический материал на основе ароматических аминов и тетрабромметана // Научно-технический сб. «Радиационная стойкость электронных систем. Стойкость-2007». М., 2007. Вып. 10. С. 197–198.

6. Донской Е. Н., Иванов Г. А., Ковшов К. Н., Лазарев С. А. Расчет пространственно-спектральных распределений поля излучения изотопной установки ЭТАЛОН-3 // Сб. докл. «Методы и средства физических измерений». Т. 1. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2007. С. 49–60.

7. Герасимов А. И., Гордеев В. С., Горностай-Польский С. А. и др. Измерения характеристик высокоинтенсивных полей излучений при проведении радиационных исследований на моделирующих установках и комплексах РФЯЦ-ВНИИЭФ // Сб. докл. «VIII Харитоновские чтения по проблемам физики высоких плотностей энергии». Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2006. С. 73–80.

8. Шмаров А. Е. Программа VISUAL TRIADA – инструмент численного моделирования совместного переноса гамма-квантов, электронов и позитронов в веществе методом Монте-Карло // Сб. докл. Саров, 14–20 октября 2002 г. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2002. С. 129–135.

9. Донской Е. Н. Методика и программа ЭЛИЗА решения методом Монте-Карло задач совместного переноса гамма-излучения, электронов и позитронов. Вторая версия // Там же. С. 93–99.

10. Грунин А. В., Донской Е. Н., Залялов А. Н. и др. Экспериментальная верификация численной модели поля излучения изотопной установки ЭТАЛОН-3 // Сб. докл. «XII Харитоновские тематические научные чтения». Саров, 2010. С. 118–121.

11. Алексеев Г. С., Грунин А. В., Тихонов А. И. и др. Характеристики детектора с диэлектрическим рассеивателем для регистрации импульсного гамма-излучения // Приборы и техника эксперимента. 1983. № 5. С. 36–38.

12. Грунин А. В., Лазарев С. А., Ковшов К. Н., Тарасов М. Д. Технология передачи размера единиц измерений при импульсной градуировке детекторов гамма-излучения // Сб. докл. IX Межотраслевой конф. по радиационной стойкости. Снежинск, 12–15 октября 2010 г. Снежинск: РФЯЦ-ВНИИТФ, 2011. С. 305–311.