

ИССЛЕДОВАНИЕ НОВЫХ ДОЗИМЕТРИЧЕСКИХ ПЛЕНОК НА ОСНОВЕ АРОМАТИЧЕСКИХ АМИНОВ И ТЕТРАБРОММЕТАНА ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ТОРМОЗНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ МОДЕЛИРУЮЩИХ УСТАНОВОК

А. В. Грунин, Д. В. Ткачук, О. В. Корочкина, О. С. Кротова

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

Для дозиметрического сопровождения радиационных исследований в ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ» на моделирующих установках (МУ) широко применяются метод ЦДП (цветовых дозиметров пленочных) и радиотермолюминесцентный метод дозиметрии ИКС (индивидуального контроля с помощью стекол) с детекторами на основе алюмофосфатного стекла ИС-7 [1, 2].

Разработка и совершенствование методов дозиметрии, с целью увеличения точности измерений, всегда будут представлять большой интерес. Цветовые и «окрашиваемые» пленки предоставляют возможность многократного съема информации о поглощенной дозе в течение длительного времени, однако сам дозиметр пригоден лишь для одноразового использования. В связи с этим очень актуальна разработка пленочных дозиметров для диапазона поглощенных доз ионизирующего излучения (ИИ) от 10 до $3 \cdot 10^3$ Гр.

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 [3]. Широко распространенные в настоящее время цветные пленочные дозиметры позволяют определять величину поглощенной дозы ИИ в поликарбонатной пленке в диапазоне от 10^3 до $2 \cdot 10^5$ Гр [1, 4, 5].

Цель работы:

– исследование основных характеристик новых дозиметрических материалов на основе ароматических аминов и тетрабромметана при измерении поглощенных доз ионизирующих излучений в диапазоне от 50 до 1 кГр;

– исследование основных характеристик новых дозиметрических материалов, с улучшенными свойствами, для измерения поглощенных доз ионизирующих излучений в диапазоне от 200 до 1000 Гр.

Объекты исследований – образцы дозиметрических материалов размером (10×60) мм², приготовленные в виде пленок толщиной от 110 до 200 мкм из раствора в дихлорэтаноле ПВХ массовый марки М64 с добавками ароматического амина Ам и СВг₄ (концентрация от 0,1 до 0,5 моль/л); образцы дозиметрических материалов размером (12×30) мм², приготовленные в виде пленок толщиной 115 ± 5 мкм из раствора в дихлорэтаноле ПВХ с добавками ароматического

амина Ам и СВг₄ (концентрация 0,02 моль/л) с последующим нанесением слоя поливинилового спирта (ПВС). Дозиметрические пленки изготовлены в ФГУП «НИФХИ им. Л. Я. Карпова» и поставлены в ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ» в конце 2008 г. и начале 2010 г. соответственно.

Полимерные образцы пленок содержали донорно-акцепторные добавки N, N, N', N'-тетраметил-4, 4'-диаминодифенилметана и СВг₄. Образцы были приготовлены из раствора в дихлорэтаноле ПВХ с добавками Ам и СВг₄ путем испарения растворителя. Для этого вначале растворяли ПВХ в дихлорэтаноле в массовом соотношении 1 : 50. Затем в растворенный ПВХ поочередно вводили Ам и СВг₄ в нужной концентрации при красном свете и размешивали в течение 30 мин. Полученный раствор выливали в специально приготовленную емкость, представляющую собой стакан диаметром 7 см и высотой 5 см с натянутой на дно этого стакана целлофановой пленкой. Стакан помещали в вытяжном шкафу на горизонтальную металлическую плоскость, которую предварительно юстировали с помощью уровня. Раствор сушили в темноте при комнатной температуре и при отключенной тяге в течение 5–7 дней, после чего целлофановую пленку удаляли, а сформированную пленку досушивали в термостатирующем устройстве при 30–35 °С в течение 1–2 суток. Затем пленку разрезали на образцы и помещали в пакет из черной бумаги для хранения и исследований. Методика приготовления дозиметрических материалов как для первого объекта исследований, так и для второго, одинакова за одним исключением – во втором случае готовые образцы покрывали слоем поливинилового спирта (ПВС) толщиной $5 \div 10$ мкм.

Сводные данные по 20 партиям образцов дозиметрических пленок приведены в табл. 1. Сводные данные по весовым составам дозиметрических пленок в зависимости от концентрации примесей С приведены в табл. 2. Данные по партии образцов дозиметрических пленок с ПВС приведены в табл. 3.

В ходе исследований характеристик новых дозиметрических материалов было необходимо в соответствии с общепринятыми процедурами:

– оценить работоспособность исследуемых образцов в условиях воздействия тормозного излучения (ТИ) импульсных, импульсно-периодических ускорителей электронов и при статическом облучении;

– исследовать фединг, получить зависимость оптической плотности A дозиметрического материала от времени t после облучения;

– получить зависимость оптической плотности A пленок от поглощенной дозы D ТИ;

– исследовать влияние на дозиметрический материал паразитной подсветки при измерениях;

– установить нижний и верхний пределы дозовой чувствительности дозиметрического материала.

Измерения оптической плотности A дозиметрических пленок проводились на спектрофотометре Genesys 6 [6]. Экспозиционная доза ТИ измерялась методом ИКС, а поглощенная в пленках доза ТИ определялась расчетным путем с привлечением методики и программы ТРИАДА [7].

Таблица 1

Сводные данные по 20 партиям образцов дозиметрических пленок без ПВС

№ партии	Толщина пленки h , мкм	Концентрация примесей C , моль/л	Сушка при $t_{\text{комн.}}$, дни	Дополнит. сушка, °C/дни	Диапазон измеряемых доз D , Гр	$A(D)_{100}$, отн. ед.	$A(D)_{250}$, отн. ед.
1	125±5	0,5	7	–	50–250	0,50	2,04
2	125±5	0,5	7	–	50–250	0,50	2,00
3	125±5	0,5	7	–	50–250	0,43	1,91
4	150±5	0,5	7	35/1	50–250	0,88	2,93
5	125±5	0,5	7	25/1	50–250	0,44	1,91
6	145±5	0,5	7	35/2	50–250	0,58	2,12
7	160±5	0,5	5	30/1	50–250	0,50	1,72
8	150±5	0,5	7	30/1	50–250	0,50	2,09
9	150±5	0,5	7	32/1	50–250	0,53	2,02
10	140±5	0,5	6	–	50–250	0,39	1,30
11	200±5	0,5	7	30/2	50–250	0,45	1,50
12	150±5	0,55	7	35/2	50–250	0,41	1,33
13	150±5	0,6	7	35/2	50–250	0,20	0,66
14	120±5	0,3	7	–	50–300	0,41	1,50
15	120±5	0,3	7	–	50–400	0,31	1,20
16	120±5	0,2	7	–	70–400	0,25	0,95
17	120±5	0,2	7	–	70–400	0,25	1,00
18	135±5	0,15	7	30/1	70–400	0,25	1,05
19	120±5	0,13	7	30/1	100–700	0,20	0,75
20	110±5	0,1	7	30/1	100–1000	0,11	0,29

Таблица 2

Сводные данные по весовым составам дозиметрических пленок без ПВС в зависимости от концентрации примесей C

Элемент, %	Концентрация примесей C , моль/л					
	0,02	0,1	0,2	0,3	0,5	0,6
C	38,7	38,6	38,6	38,4	38,3	38,2
N	0,04	0,2	0,4	0,6	1	1,3
H	4,83	4,8	4,7	4,8	4,6	4,6
Br	0,45	2,3	4,6	6,7	11,4	14,3
Cl	55,98	54,1	51,7	49,5	44,7	41,6

Таблица 3

Данные по партии образцов дозиметрических пленок с ПВС

№ партии	Толщина пленки h , мкм	Концентрация примесей C , моль/л	Сушка при $t_{\text{комн.}}$, дни	Диапазон измеряемых доз D , Гр
1	115±5	0,02	5–7	200–1000

Исследованы дозиметрические пленки из двадцати партий опытных образцов, обладающие различными исходными характеристиками: толщиной, концентрацией примесей, временем сушки и, как следствие, различными радиационной чувствительностью и диапазоном поглощенных доз. Найдены оптимальные приемы работы с дозиметрическими пленками в составе дозиметров при работе в полях ТИ МУ и при определении оптической плотности пленок на спектрофотометре Genesys 6.

В качестве оптимального окружения дозиметрической пленки для спектра ТИ МУ СТРАУС-2 [8] с граничной энергией ≈ 3 МэВ на данном этапе исследований выбраны алюминиевые пластины толщиной 2 мм (с фронтальной стороны) и 1 мм (с тыльной стороны), так как при этом поглощенная доза в дозиметрической пленке равна поглощенной дозе в равновесном слое воздуха (кремния), для спектра ТИ МУ ЛИУ-30 [9] с граничной энергией ≈ 40 МэВ предложена конструкция дозиметра – медные пластины толщиной 5 мм (с фронтальной стороны) и 3 мм (с тыльной стороны). Рассчитаны энергетические зависимости чувствительности таких дозиметров в диапазоне энергий гамма-квантов от 50 до 40 МэВ.

В качестве оптимального окружения дозиметрической пленки для спектра γ -излучения установки ЭТАЛОН-3 [10] выбраны алюминиевые пластины 2 мм (с фронтальной и тыльной сторон).

Исследованы зависимости оптической плотности A пленок от длины волны λ спектрофотометра (см. рис. 1) и установлено, что пленки имеют максимум радиационной чувствительности на длине волны $\lambda \approx 619 \div 621$ нм.

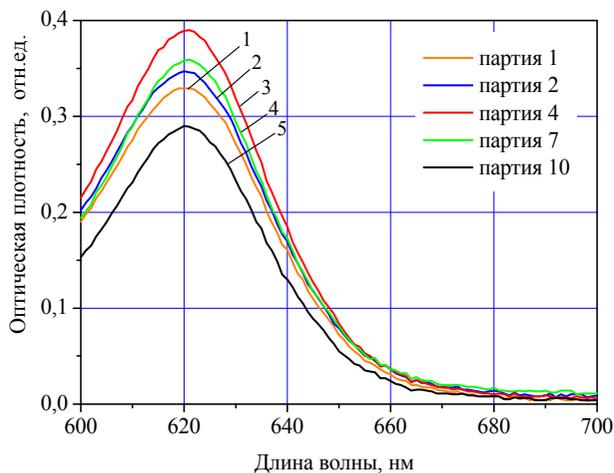


Рис. 1. Зависимости оптической плотности пленок из партий 1, 2, 4, 7, 10 от длины волны λ после импульса ТИ МУ СТРАУС-2: 1 – партия 1; 2 – партия 2; 3 – партия 4; 4 – партия 7; 5 – партия 10

Исследован фединг после импульсного облучения (см. рис. 2, 3). Фединг можно описать эмпирическим уравнением

$$A = A_0 + B_1 \exp(-t/\tau_1) + B_2 \exp(-t/\tau_2),$$

где t – время, прошедшее после облучения, $A_0, B_1, B_2, \tau_1, \tau_2$ – константы, причем $\tau_1 \sim 10^2$ мин., а $\tau_2 \sim 10^3$ мин., а параметры A_0, A_1, A_2 зависят от поглощенной дозы и принимают значения от 0,01 до 3.

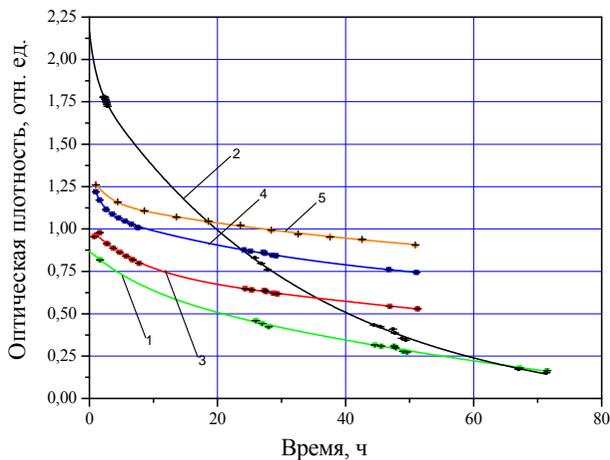


Рис. 2. Зависимости оптической плотности пленок из партий 4, 6, 15, 19, 20 от времени (дозы ТИ МУ ЛИУ-10-20: 200, 300, 400, 700, 1000 Гр): 1 – партия 4; 2 – партия 6; 3 – партия 15; 4 – партия 19; 5 – партия 20

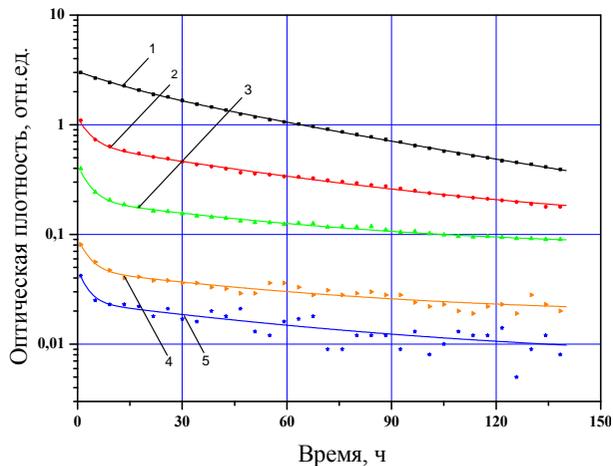


Рис. 3. Зависимости оптической плотности пленок из партии № 13 от времени для при поглощенных в них дозах ТИ МУ ЛИУ-30 в диапазоне от 22 до 514 Гр: 1 – доза 514 Гр; 2 – доза 198 Гр; 3 – доза 85 Гр; 4 – доза 37 Гр; 5 – доза 22 Гр

Определены зависимости оптической плотности A пленок от поглощенной дозы D ТИ, аппроксимированные степенной функцией, $A = A_0 D^\Delta$, где A_0 принимает значения в диапазоне от $3 \cdot 10^{-4}$ до $8 \cdot 10^{-4}$, а Δ – находится в диапазоне от 1 до 1,5. При относительно малых поглощенных дозах наблюдается сверхлинейный характер дозовой зависимости образцов. В качестве примера на рис. 4 приведены зависимости оптической плотности пленок из партий № 4, 6, 15, 19, 20 от поглощенной в них дозы ТИ МУ ЛИУ-10-20 [11].

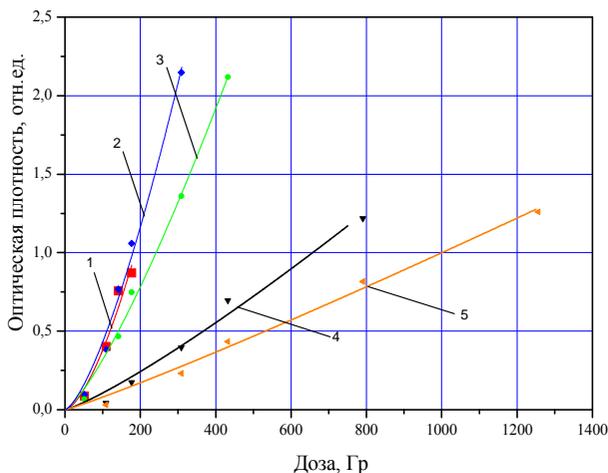


Рис. 4. Зависимости оптической плотности пленок из партий № 4, 6, 15, 19, 20 от поглощенной в них дозы ТИ МУ ЛУ-10-20: 1 – партия 4; 2 – партия 6; 3 – партия 15; 4 – партия 19; 5 – партия 20

Дозовые зависимости оптической плотности пленок, полученные разработчиками при воздействии γ -излучения источника ^{60}Co несколько отличаются от дозовых зависимостей оптической плотности пленок, полученных при воздействии импульсного ТИ МУ ЛУ-10-20 и ЛИУ-30 (см. рис. 5, 6), что можно объяснить влиянием более высокой мощности дозы при импульсном облучении, федингом во время статического облучения, а также изменением свойств дозиметрических пленок при хранении.

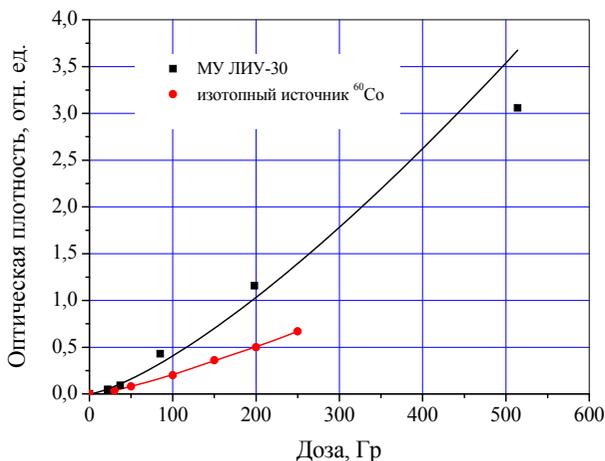


Рис. 5. Сравнение дозовых зависимостей для пленок из партии № 13: 1 – МУ ЛИУ-30; 2 – изотопный источник ^{60}Co

Получены зависимости изменения оптической плотности образцов, покрытых слоем поливинилового спирта (ПВС), после облучения дозами: 175, 350, 530, 700, 870, 1750, 2640 Гр. Показания снимались в течение 6 суток (см. рис. 7). Полученные кривые имеют

максимум в диапазоне от 10 до 100 ч. Через 5 суток величина A уменьшается на незначительную величину, лежащую в интервале от 10 до 20 % за одинаковый период времени, что характеризует высокую стабильность радиационного отклика.

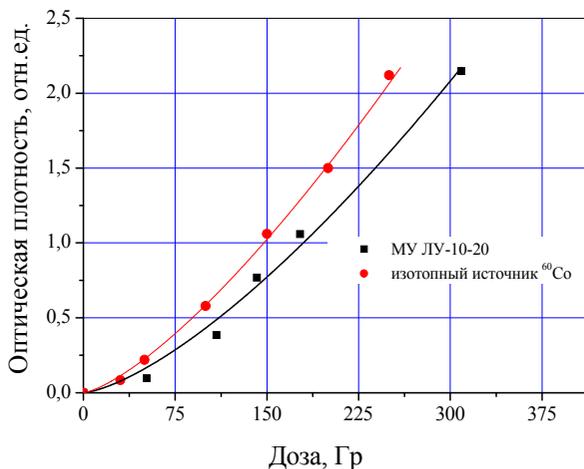


Рис. 6. Сравнение дозовых зависимостей для пленок из партии № 6: 1 – изотопный источник ^{60}Co ; 2 – МУ ЛУ-10-20

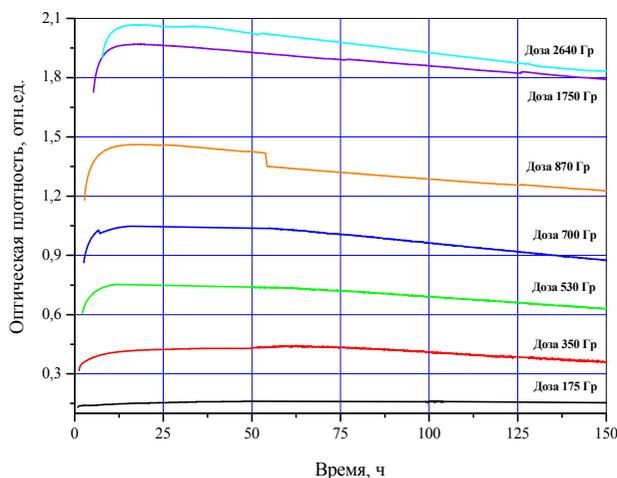


Рис. 7. Зависимость оптической плотности образцов с ПВС слоем от времени после облучения дозами 175, 350, 530, 700, 870, 1750, 2640 Гр

Определена зависимость оптической плотности A пленок от поглощенной дозы D ТИ, аппроксимированная функцией

$$y = A_2 + (A_1 - A_2) / (1 + (x/x_0)/p),$$

где A_1, A_2, x_0, p – константы (см. рис. 8).

Согласно сделанным оценкам, относительная погрешность измерений оптической плотности пленочных дозиметров на спектрофотометре Genesys 6 примерно равна 3–7 % в зависимости от партии пленок.

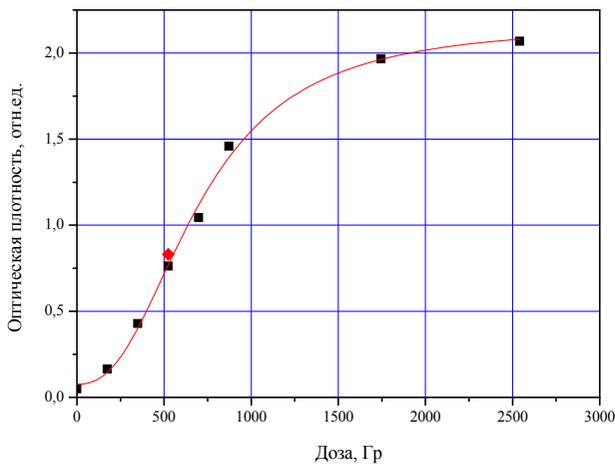


Рис. 8. Зависимость оптической плотности пленок с ПВС слоем от поглощенной в них дозы γ -излучения установки ЭТАЛОН-3

Результаты исследований свидетельствуют о возможности применения новых дозиметрических материалов на основе ароматических аминов и тетрабромметана для измерения поглощенных доз ТИ в диапазоне от 50 до 1 кГр после отработки производителем технологии по обеспечению стабильности характеристик (чувствительности). В 2009 г. ФГУП «НИФХИ им. Л. Я. Карпова» провел такие работы. Были разработаны новые пленочные дозиметрические материалы, характерной особенностью которых является нанесенный на их поверхность слой поливинилового спирта, играющий роль защитного покрытия, препятствующего проникновению атмосферного кислорода вглубь образцов и улечиванию из них активного соединения СВг₄. В настоящий момент проводятся исследования полученных дозиметрических материалов в составе дозиметра для определения области их практического использования.

Для пленок, участвовавших в эксперименте на установке ЭТАЛОН-3, наличие защитного слоя обеспечило повышение стабильности чувствительности при хранении материалов, а также радиационного отклика облученных образцов.

1. Иванов В. И. Курс дозиметрии: Учебник для ВУЗов. М.: Энергоатомиздат, 1988. С. 400.

2. Бочвар И. А., Гимадова Т. И., Кеирим – Мааркус И. Б. и др. Метод дозиметрии ИКС. М.: Атомиздат, 1977. С. 224.

3. Колнинов О. В., Колесникова В. В., Шаварин Ю. Я. // Научно-технический сборник «Радиационная стойкость электронных систем. Стойкость-2007». М., 2007. Вып. 10. С. 197–198.

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

5. Пудов В. П., Генералова В. В., Громов А. А. // VII Межотраслевая конференция по радиационной стойкости: Сборник докладов. Снежинск: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ», 2006. С. 368–372.

6. Руководство пользователя для спектрофотометра Genesys 6. США. 2002.

7. Грунин А. В., Шмаров А. Е. // VII Межотраслевая конференция по радиационной стойкости: Сборник докладов. Снежинск: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ», 2006. С. 53–59.

8. Гордеев В. С., Мысков Г. А., Филиппов В. О., Аверченков В. Я. // В сб.: Труды РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2001. Вып.1. С. 402–407.

9. Басманов В. Ф. Герасимов А. И., Гордеев В. С. и др. // VIII Харитоновские чтения по проблемам физики высоких плотностей энергии: Сборник докладов. Саров: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 2006. С. 139–145.

10. Лазарев С. А., Донской Е. Н., Ковшов К. Н., Иванов Г. А. Расчет пространственно-спектральных распределений поля излучения изотопной установки ЭТАЛОН-3 // VIII Межотраслевая конференция по радиационной стойкости: Сборник докладов. Саров: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 2008. С. 323–332.

11. Завьялов Н. В., Тельнов А. В., Хохлов Ю. А. и др. // ВАНТ. Сер. Ядерно-физические исследования. 1997. Вып. 2, 3 (29, 30). С. 39–41.