

# Определение поглощенной дозы гамма-излучения в интенсивных радиоактивных полях с применением химической дозиметрии

Данная работа посвящена применению химической дозиметрии в условиях интенсивного радиоактивного облучения на различных ядерных и радиационно опасных объектах. Изучена зависимость изменения оптических свойств ряда органических растворителей под действием гамма-излучения, и определен эффективный состав дозиметрической жидкости для определения поглощенной дозы, обладающий стабильностью показаний во времени с минимальной погрешностью измерений и отсутствием пострадиационного эффекта.

**Ключевые слова:** химическая дозиметрия, дозиметрическая система, оптическая плотность (светопропускание) раствора, поглощенная доза гамма-излучения, экспоненциальная зависимость измерений, градуировочный график.

**Е.Е.Куницына, В.И.Жованик**

Научно исследовательский центр безопасности технических систем «12 Центральный научно-исследовательский институт» Минобороны России, г. Москва

Эксплуатация ядерных и радиационно опасных объектов различного назначения в той или иной степени связана с наличием полей гамма-излучения, интенсивность которых требует контроля как для обеспечения радиационной безопасности, так и в исследовательских целях.

Контроль интенсивного гамма-излучения, например, при испытательной деятельности на полигонах, на аварийных объектах, как правило, осуществляется дистанционно с помощью системы датчиков, размещаемых в зоне радиоактивного облучения, которые требуют прокладки кабельных линий при непрерывном контроле или их извлечения после облучения через определенное время. Прокладка кабельных линий к детекторам требует значительных временных и материальных затрат. В случае неопределенного места расположения источника радиоактивного облучения или его движения установка детекторов

с кабельными линиями бывает принципиально невозможной. В этом случае, как правило, устанавливаются дозиметры в местах наиболее вероятного размещения источника радиоактивного излучения. В случае сбоев электронной техники или опасности радиоактивного облучения испытателей целесообразно использовать изолированные дозиметрические системы (ДС), основанные на химической дозиметрии ионизирующих излучений.

Принцип их действия основан на способности ДС изменять свои свойства под действием излучения. К подобным свойствам относятся: вязкость, образование продуктов радиолитического распада, изменение светопропускания, флуоресценции и др. Любая из ДС имеет свои преимущества и недостатки, которые определяют пределы их применения. Остановимся на основных требованиях, предъявляемых к ДС в составе химического дозиметра и дадим краткую оценку наиболее распространенным ДС.

### **Особенности дозиметрических измерений химическими методами и анализ распространенных дозиметрических систем**

Для определения поглощенной дозы с помощью ДС в общем случае необходимо знать величину выхода превращения, которое претерпевает система при облучении. Это значение обычно осуществляют сравнением поглощенной дозы, найденной прямым методом (чаще ионизационным или др.) с количеством химического превращения в этой системе при данной дозе.

Для градуировки вновь разрабатываемой ДС не обязательно непосредственно определять величину выхода превращения, достаточно построить градуировочную кривую, т. е. зависимость количества химического превращения в ДС от дозы при данных условиях [1].

В настоящее время в дозиметрии ионизирующих излучений предложено множество ДС, представляющих собой водные растворы, органические жидкости, твердые тела, газы

или смеси веществ. Однако широкое применение их в радиационной химии находят лишь немногие, удовлетворяющие определенным требованиям.

Во-первых, ДС должна иметь максимально возможный радиационно-химический выход продуктов радиолитического распада, который в широких пределах не должен зависеть, по возможности, от вида излучения, его энергии, дозы и мощности дозы, наличия примесей, температуры и других условий, которые могут меняться во время облучения.

Во-вторых, ДС должна быть стабильной до облучения и особенно после него в течение длительного времени (отсутствие пострадиационного эффекта).

В-третьих, желательна независимость от степени чистоты химических реактивов, составляющих рецептуру ДС для химического дозиметра.

Также следует отметить целесообразность выбора наиболее простых и оперативных аналитических методик для оценки химического превращения в ДС, т. е. выбор измеряемого превращения ДС (образование новых продуктов, изменение оптической плотности, вязкости...) и метода его оценки (потенциометрическое титрование, спектрофотометрирование, денситометрирование и др.).

Каждая из описанных в литературе ДС не удовлетворяет в полной мере всем перечисленным выше требованиям. В настоящее время наиболее изучены ДС на основе водных растворов, в частности, дозиметр Фрикке, который широко используется в исследовательских целях. В основе дозиметра лежит ферросульфатная ДС, представляющая собой  $(1-5) \cdot 10^{-3}$  М водный раствор сернокислого закисного железа в 0,4 М  $H_2SO_4$ , содержащий  $10^{-3}$  моль/л  $NaCl$  и насыщенный воздухом [1]. Под действием ионизирующего излучения на подобный раствор  $Fe^{2+}$  окисляется до  $Fe^{3+}$ , концентрация которого и служит мерой погло-

щенной дозы. Определение концентрации ионов  $Fe^{3+}$ , образующихся при радиоллизе ферросульфатной системы, проводят различными методами: потенциометрическим титрованием, колориметрическим и прямым спектрофотометрическим. При этом наиболее чувствительным является прямой спектрофотометрический метод определения оптической плотности в ультрафиолетовой области спектра с достаточной степенью точности (~2%), что позволяет использовать данную ДС в диапазоне 0,004–0,04 Мрад, верхний предел которого ограничивается израсходованием кислорода, присутствующего в растворе. Значимым недостатком при этом является необходимость приготовления ДС непосредственно перед облучением во избежание самопроизвольного медленного окисления системы, насыщенной воздухом, при нахождении вне облучения.

Из органических ДС широкое распространение получили растворы тетрахлорэтилена, хлорбензола и дихлорбензола в органических растворителях. При их облучении образуется  $HCl$ , количество которой и служит мерой дозы. Их состав достаточно сложный, но преимуществом является относительная нечувствительность к примесям. Запаянные ампулы, в которые разливается дозиметрический раствор, могут храниться несколько лет без изменения своих потребительских свойств. Концентрацию  $HCl$  после облучения определяют с помощью осциллометра при измерении высокочастотной проводимости (ампулы при этом не вскрывают) либо с помощью титрования в присутствии индикатора [1].

Применение в качестве ДС дибутилфталата позволяет осуществить измерение доз облучения в интервале и малых, и больших доз, однако наличие пострадиационного эффекта требует долговременной выдержки ампул с ДС перед измерением [2]. Приготовление ДС на основе дибутилфталата в смеси с эпоксидиановой смолой и последующее

определение поглощенной дозы излучения из градуировочной зависимости изменения относительной вязкости раствора от дозы облучения показало отсутствие пострадиационного эффекта, однако заявлена точность измерения  $\pm 10\%$  [3].

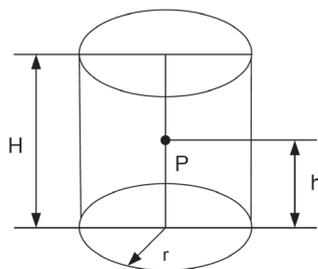
Таким образом, стабильность показаний ДС в целом после облучения зависит от сложных процессов радиолиза и полимеризации, сопровождающихся цепными реакциями при рекомбинации радикалов по различным механизмам, от чего напрямую зависит выход продуктов в зависимости от поглощенной дозы излучения.

Поскольку при выполнении работ на испытательных полигонах в полевых условиях не всегда возможны своевременная доставка в лабораторию имеющихся ДС и оперативное получение дозиметрической информации, специалистами НИЦ БТС 12 ЦНИИ Минобороны России были выполнены исследования по разработке такой ДС, которая должна отличаться стабильностью показаний в течение длительного времени, простотой с точки зрения состава рецептуры из химических реактивов обычной чистоты и широким диапазоном измерений одновременно с достаточным уровнем точности.

### **Исследование свойств дозиметрических систем на основе органических растворителей в смеси с элементарной серой**

Разработка рецептуры жидкой ДС в представленной работе основана на относительном методе измерения светопропускания ДС при постоянном волновом числе в зависимости от времени облучения по сравнению с необлученной ДС. Дальнейшее определение поглощенной дозы гамма-излучения выполняют по градуировочной зависимости светопропускания от времени облучения (поглощенной дозы).

Для выполнения эксперимента применена облучательная установка «Исследователь»,



$$P = 2\pi\sigma K_{\gamma} \left( \operatorname{arctg} \frac{h}{r} + \operatorname{arctg} \frac{H-h}{r} \right)$$

$\sigma$  – активность на единицу поверхности  
 $(K_{\gamma} - \gamma)$  – постоянная

**Рис.1.** Внешний вид облучательной установки «Исследователь» и алгоритм расчета дозы гамма-излучения в точке расположения бюксов с дозиметрической жидкостью.

которая состоит из свинцового контейнера, играющего роль биологической защиты, облучателя внутри контейнера, механизма подъема и поворота штока [1]. Внешний вид установки приведен на рис.1.

Цилиндрический облучатель представляет собой кассету с источниками гамма-излучения  $^{60}\text{Co}$ . Кассета имеет 36 трубчатых ячеек, расположенных по окружности и скрепленных между собой.

Жидкую ДС помещают в стеклянные бюксы с притертыми крышками, которые затем помещают в зону облучения, время выдержки при этом составляет: 10 с (спуск–подъем), 30 с, 1 мин, 5 мин, 10 мин, 20 мин, 30 мин, 1 час. Максимальное время облучения определяется снижением светопропускания от 100% до минимальных значений (1–2%).

Во избежание выхода из строя индивидуального дозиметра для определения поглощенной дозы гамма-излучения в месте расположения бюксов с ДС применен расчетный метод в соответствии с алгоритмом расчета дозы для цилиндра с равномерно распределенной по боковой поверхности активностью, полость цилиндра – не поглощающее вещество [4]. По результатам расчетов, приведенным выше,

времени выдержки бюксов при облучении соответствует диапазон поглощенной энергии гамма-излучения 0–2 Мрад.

После облучения ДС переливается из бюксов в измерительные кварцевые кюветы спектрофотометра, работающего в области видимого и ультрафиолетового света (СФ-26). Кюветы с ДС для измерения зависимости светопропускания от поглощенной дозы гамма-излучения при постоянном волновом числе ( $\lambda = 390$  нм) помещают в измерительный канал спектрофотометра и осуществляют измерения относительно необлученной ДС.

На предварительном этапе исследований анализировалось светопропускание ряда органических растворителей, насыщенных элементарной серой ( $S$ ) для усиления процесса полимеризации под действием облучения и увеличения, таким образом, продуктов химического превращения в ДС. Перечень растворителей приведен в табл.1.

Выбор растворителей в смеси с элементарной  $S$  в качестве ДС был выполнен в соответствии со следующими условиями:

- радиочувствительность в диапазоне 380–400 нм;

**Табл.1.** Перечень органических растворителей в смеси с *S*, облученных в ходе исследований.

Наименование жидкости	Содержание элементарной серы, мг/100 мл жидкости						
	0,0	0,02	0,4	0,8	1,2	1,6	2,0 (нас.)
Скипидар							+
Бензол							+
Дихлорбензол	+	+	+	+	+	+	+
Хлорбензол							+
Ксилол							+
Четыреххлористый углерод					+		
Толуол							+
Дихлорэтан					+		+

- отсутствие значимой летучести ДС, снижающей светопропускание и искажающей таким образом результаты измерений;
- отсутствие пострадиационного эффекта и стабильность показаний светопропускания в течение длительного времени при отсутствии возможности проводить измерения непосредственно после облучения.

### Дозиметрическая система на основе дихлорбензола с элементарной серой. Построение градуировочного графика

По анализу выполнения требуемых условий можно сделать следующие выводы:

- по радиочувствительности все растворители, насыщенные серой, находятся в диапазоне 280–400 нм при измерении светопропускания на спектрофотометре СФ-26;
- неароматические растворители, насыщенные серой, обладают повышенной летучестью;
- все растворители, насыщенные серой, исключая насыщенный серой дихлорбензол (ДХБ +  $S_{нас.}$ ), обладают пострадиационным эффектом, т. е. в отсутствие облучения светопропу-

скание снижается и, таким образом, оценка показаний со временем становится некорректной.

На следующем этапе были проведены исследования по облучению ДХБ в смеси с элементарной *S* различной концентрации (табл.1), в результате чего выбрана и запатентована двухфазная система, состоящая из ДХБ и элементарной *S* в соотношении компонентов, соответствующих насыщению *S* в растворителе, масс. %:

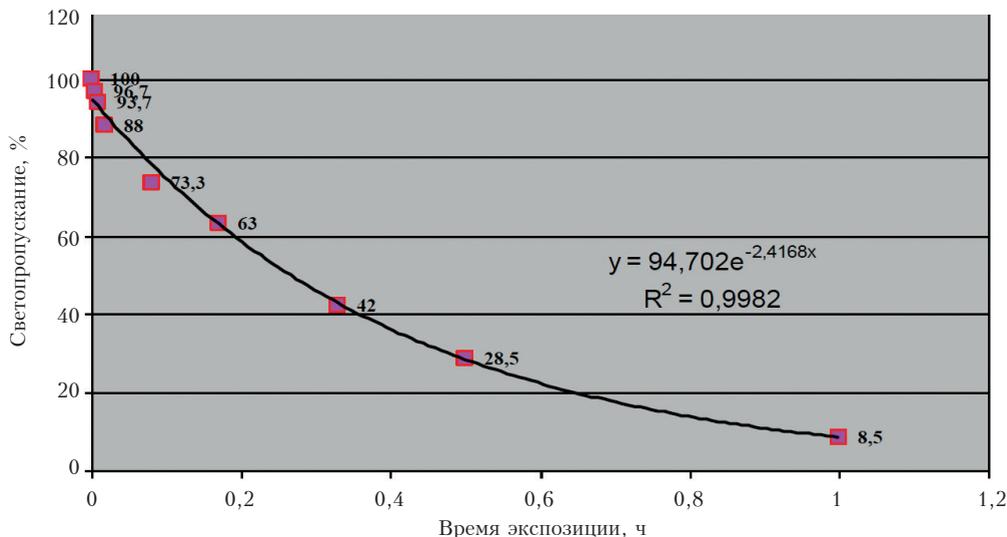
- дихлорбензол – 98,0÷99,0;
- элементарная сера – 1,0÷2,0 [5].

Для построения градуировочной зависимости светопропускания ДХБ +  $S_{нас.}$  от времени экспозиции (поглощенной дозы гамма-излучения) приводим результаты измерений светопропускания и его логарифма для данной ДС (табл.2).

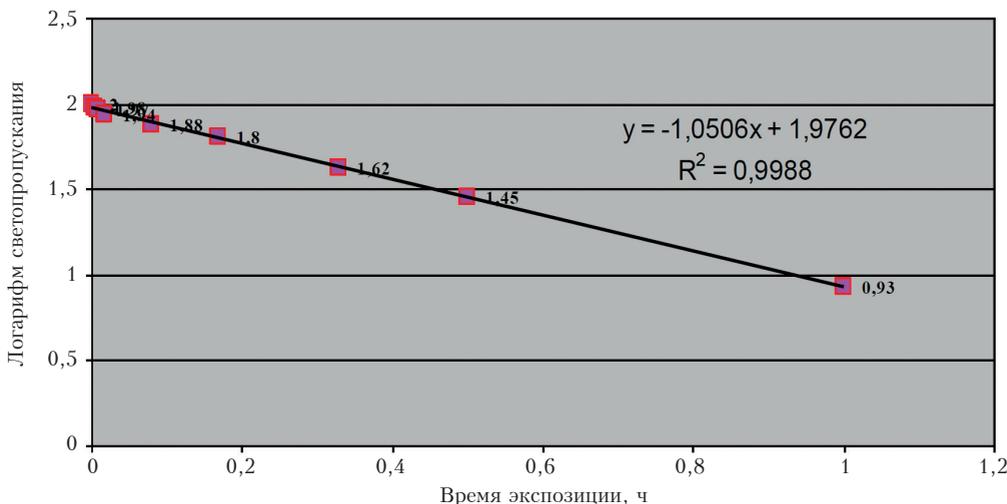
По полученным результатам построена графическая зависимость светопропускания ДХБ +  $S_{нас.}$  от времени экспозиции (поглощенной дозы гамма-излучения), которая приведена на рис.2.

**Табл.2.** Результаты измерений зависимости светопропускания ДХБ +  $S_{нас.}$  и его логарифма от поглощенной дозы гамма-излучения.

Время экспозиции	Спуск–подъем	30 с	1 мин	5 мин	10 мин	20 мин	30 мин	1 ч
Доза поглощенная, <i>Мрад</i>	0,005	0,0017	0,03	0,17	0,33	0,7	1	2
Светопропускание <i>T</i> , %	96,7	93,7	88,0	73,3	63,0	42,0	28,5	8,5
lgT	1,98	1,97	1,94	1,88	1,8	1,62	1,45	0,93



**Рис.2.** График зависимости светопропускания ДХБ +  $S_{нас.}$  от времени экспозиции (поглощенной дозы гамма-излучения).



**Рис.3.** Градуировочный график зависимости светопропускания ДХБ +  $S_{нас.}$  от времени экспозиции (поглощенной дозы гамма-излучения) в полулогарифмическом масштабе.

Далее построен градуировочный график зависимости светопропускания ДХБ +  $S_{нас.}$  от времени экспозиции (поглощенной дозы гамма-излучения) в полулогарифмическом масштабе, который приведен на рис.3.

**Оценка погрешности измерений светопропускания ДС на основе ДХБ +  $S_{нас.}$  под действием гамма-излучения**

Исходные данные, а именно: экспериментальные значения светопропускания ( $lgT_{экс.}$ ),

расчетные значения светопропускания ( $lgT_{рас.}$ ) из градуировочного графика и отклонение между ними  $\Delta$  для ДС на основе ДХБ +  $S_{нас.}$  приведены в табл.3.

Расчетные значения  $lgT_{рас.}$  определяются по формуле линейной зависимости из градуировочного графика (рис.3).

$$Y = -1,05 \cdot X + 1,98, \quad (1)$$

где:  $X$  — значения времени экспозиции, отн. ед.;  $Y$  — значения  $lgT_{рас.}$  из градуировочного графика.

**Табл.3.** Исходные данные для определения погрешности измерений оптической плотности дозиметрической жидкости на основе ДХБ +  $S_{нас}$ .

№ п/п	Время экспозиции	Экспериментальное значение $lgT_{экс.}$	Расчетное значение $lgT_{рас.}$	$\Delta$
1	0	2	1,98	0,02
2	0,004	1,98	1,98	0
3	0,008	1,97	1,97	0
4	0,017	1,94	1,96	0,02
5	0,08	1,88	1,90	0,02
6	0,17	1,8	1,78	0,02
7	0,33	1,62	1,63	0,01
8	0,5	1,45	1,45	0
9	1,0	0,93	0,93	0

Отклонение экспериментальных данных от значений по градуировочному графику определяется по формуле:

$$\Delta = |lgT_{экс.} - lgT_{рас.}| \quad (2)$$

Среднее отклонение составляет:

$$\bar{\Delta} = \frac{\sum_{i=1}^n \Delta_i}{n} = \frac{0,09}{9} = 0,01. \quad (3)$$

Среднеквадратическое отклонение для многократных измерений определяется по формуле:

$$\begin{aligned} \sigma &= \sqrt{\frac{\sum (\Delta_i - \bar{\Delta})^2}{n-1}} = \\ &= \sqrt{\frac{4 \cdot 0,0001 + 4 \cdot 0,0001 + 0}{8}} = \\ &= \sqrt{0,0001} = 0,01 \end{aligned} \quad (4)$$

Двойное среднеквадратическое отклонение составляет:

$$2\sigma = 0,02; \quad lgT = 0,02; \quad 10^{0,02} = 1,047.$$

Таким образом, случайная составляющая погрешности измерений (двойное среднеквадратическое отклонение) не превышает 5%, что свидетельствует о высокой точности и, соответственно, достоверности измерений для определения поглощенной дозы гамма-излучения.

## Выводы

Облучение ДС на основе ДХБ +  $S_{нас}$  не имеет пострадиационного эффекта во всем диапазоне измеряемой поглощенной дозы гамма-излучения, что подтверждено наблюдениями за стабильностью показаний в течение более 1 месяца. Данное обстоятельство не требует оперативности в выполнении измерений, что важно для полигонной испытательной деятельности.

Случайная составляющая погрешности измерений, рассчитанная по линейной зависимости, приведенной на градуировочном графике зависимости светопропускания ДС на основе ДХБ +  $S_{нас}$ , не превышает 5% при доверительной вероятности 0,95, что свидетельствует о высокой точности и, соответственно, достоверности измерений для определения поглощенной дозы гамма-излучения.

Изменяя условия измерений, а именно, волновое число в диапазоне  $\lambda = 390 \div 10$  нм, возможно снижать чувствительность светопропускания и соответственно увеличивать заявленный диапазон определения поглощенной дозы гамма-излучения.

ДС на основе ДХБ +  $S_{нас}$  включает химические реактивы обычной степени чистоты, прямые измерения светопропускания выполняются по простой и оперативной методике, не требующей высокой квалификации специалистов.

## Литература

1. Пикаев А.К. Современная радиационная химия. Основные положения. Экспериментальная техника и методы. М.: Наука, 1985. 385 с.
2. Лобанов Н.С., Лобанов Г.П. Авторское свидетельство СССР № 1500118, кл. G01T1/04. Способ определения интегральной дозы гамма-облучения: опубл. 22.12.1987.
3. Ушаков Г.П., Лобанов Н.С. Авторское свидетельство СССР № 1575726, кл. G01T1/02. Способ дозиметрии ионизирующих излучений. Опубл. 06.10.1988.
4. Козлов В.Ф. Справочник по радиационной безопасности. М.: Атомиздат, 1977. 186 с.
5. Куницына Е.Е., Колчин В.В. Патент № 2693552 Российская Федерация, МПК G01T 1/00 (2006.01). Способ определения поглощенной дозы гамма-излучения. Опубл. 04.07.2019.

## Detection of Absorbed Gamma-Radiation Doze in Intensive Radioactive Fields with the Use of Chemical Dosimetry

Kunitsyna Elena, Zhovanik Vitalii («12th Central Research Institute» of the Ministry of Defense of Russia, Moscow, Russia)

**Abstract.** This Work is devoted to the use of chemical dosimetry in conditions of intensive radiation exposure at various nuclear and radiation-hazardous facilities.

The dependence of change in the optical properties of a number of organic solvents under gamma radiation has been studied and the most effective composition of the dosimetric liquid for the absorbed dose detection having stable readings over time with the minimal measurement error and absence of radiation effect has been determined.

**Keywords:** chemical dosimetry, dosimetry system, solution optical density (optical transmission), absorbed gamma radiation dose, measurement exponential relation, calibration curve.

Е.Е.Куницына (к.т.н., с.н.с.), В.И.Жованик (инж.)

Научно-исследовательский центр безопасности технических систем «12 Центральный научно-исследовательский институт» Минобороны России, г. Москва

Контакты: elena\_kunitsyna60@mail.ru; +7 (921) 330-98-13