

К вопросу о разделении компонентов облучения при ретроспективной дозиметрии смешанных гамма-нейтронных полей излучения

В статье дано описание исследований по разработке метода ретроспективного определения доз гамма-нейтронного облучения с разделением на компоненты на основе термостимулированной люминесценции кварца. Приводится подтверждение гипотезы о различном ходе дозовых откликов от нейтронного излучения и гамма-излучения при разных условиях термоактивации кварца строительной керамики. Показана возможность разделения люминесцентных сигналов в кварце, обусловленных гамма-излучением или нейтронным излучением.

Ключевые слова:

ретроспективная дозиметрия нейтронного излучения, термостимулированная люминесценция, контроль текущей и аварийной радиационной ситуации.

А.И.Портман, А.М.Потемкин
(ФГУП НТЦ РХБГ ФМБА России, г. Москва)

Метод ретроспективной оценки доз гамма-нейтронного излучения по термолюминесценции кварца строительной керамики может быть использован для радиационно-гигиенического обследования территорий, находящихся в непосредственной близости от предприятий по обогащению радиоактивной руды, по изготовлению ядерного топлива, АЭС, хранилищ отработавшего ядерного топлива, а также территорий, подвергшихся радиоактивному загрязнению или потенциально опасных в радиационном аспекте. Данный метод позволит определять величину дозы, полученной персоналом и населением, длительно проживающим или временно находившимся на обследуемой территории во время радиационных инцидентов. На основании информации, полученной с помощью методики ретроспективной оценки доз гамма-нейтронного облучения с разделением на компоненты, возможно: прогнозировать жизнедеятельность населения, оказавшегося

в зоне радиационного загрязнения; объективно оценивать вред здоровью, причиненный радиационным воздействием на данной территории; принимать решения по медико-санитарному и социальному обеспечению людей, а также производить радиационно-экологическую оценку состояния территории.

Коэффициент радиационного риска, кроме эпидемиологических наблюдений, определяется на основе расчетного распределения доз по территории. Существующие методы ретроспективной дозиметрии территорий не позволяют разделять гамма-нейтронное излучение по компонентам, в то время как биологическая эффективность нейтронов существенно выше, нежели гамма-излучения. Точность оценки величины нейтронных доз на загрязненной территории является недостаточной. Таким образом, есть необходимость определять ретроспективную дозу с разделением нейтронной и гамма-компоненты.

Почти все используемые на практике субстратные методы ретроспективной дозиметрии (биодозиметрия, ЭПР-дозиметрия) не обладают селективностью к нейтронной компоненте в смешанном излучении. Однако метод ретроспективной дозиметрии на основе стимулированной люминесценции кварца может обеспечить выделение нейтронной составляющей.

Для оценки дозы гамма-нейтронного облучения с выделением вкладов компонентов с помощью метода ретроспективной дозиметрии по термолюминесценции кварца строительной керамики был использован метод термовысвечивания при низкотемпературном пике 100°C [1,2]. Для дозиметрических целей предпочтительно использовать уровни захвата, обуславливающие пик термолюминесценции с температурой $\approx 100^\circ\text{C}$, т. к. с помощью этого высокочувствительного низкотемпературного пика удастся охватить наиболее актуальную с точки зрения экологии и радиационной гигиены область от 5 до 400 сГр.

Большим преимуществом метода является наличие единственного информационного пика на кривой термовысвечивания, что положительно сказывается на точности измерения.

Данный метод основан на появлении термолюминесцентного пика после термоактивации и последующего облучения тестовой дозой в 0,1–0,2 сГр. Время термоактивации – порядка 5 минут. При этом площадь этого пика пропорциональна накопленной дозе. Объяснить механизм эффекта «преддозы» на гамма-излучении можно на основании модели Циммермана [3], в соответствии с которой в кварце присутствуют электронные ловушки вблизи зоны проводимости. При облучении кварца эти ловушки захватывают электроны и, отдавая их при нагревании до 100°C, вызывают термолюминесценцию с большим федингом. При облучении кварца, кроме того, образуются «дырочные» ловушки (как носители заряда в полупроводниках) глубокого залегания, которые сохраняются практически неограниченное время. Их количество пропорционально дозе облучения. При высокотемпературной термоактивации («оптимальной температурой») часть этих ловушек переходит в центры люминесценции (тоже «дырочные»). Последние после приложения небольшой тестовой дозы, рекомбинируя при нагревании с электронными (заполненными) ловушками, дают пик термолюминесценции при температуре 100°C.

Основной тип взаимодействия нейтронов с веществом – упругое рассеяние, которое может происходить при любой энергии нейтронов, являясь наиболее вероятным процессом снижения их энергии. При этом ядро отдачи получает часть энергии нейтрона, которая преобразуется в энергию возбуждения электронных оболочек атомов, т. е. приводит к возникновению возбужденных электронов и «дырок» в кристаллическом веществе.

Можно предположить, что образование соответствующих дырочных ловушек, как

и в случае с гамма-излучением, возможно и при облучении нейтронами, однако их локализация отлична от зарядовых центров, обусловленных гамма-облучением. Это предположение было проверено экспериментально [4]. Для определения поглощенных доз нейтронного и гамма-излучения с их разделением по компонентам была выдвинута гипотеза [5], в соответствии с которой ловушки глубокого залегания, образующиеся при взаимодействии нейтронов с кварцем, располагаются ближе к зоне проводимости, чем для гамма-излучения. Это обстоятельство должно привести к тому, что ход дозовых откликов для нейтронов и гамма-излучения будет существенно отличаться при изменении температуры термоактивации, что можно использовать для разделения по поглощенным дозам нейтронной и гамма-компонент в смешанных полях гамма-нейтронного излучения.

Дозовый отклик – это квазидоза смешанного облучения, определяемая по световыходам как результат воздействия чистого гамма-облучения с применением добавочных доз от гамма-облучения [6].

Объекты исследования

Для реализации экспериментальных исследований хода дозовых откликов был изготовлен набор образцов кварца, облученных приблизительно равными калиброванными дозами гамма-нейтронного излучения. Облучение образцов №1 – №5 проводилось в поле гамма-нейтронного излучения реактора БР-1М. Облучение образца №6 и дооблучение

Табл.1. Расчет тканевых доз нейтронного излучения в экспериментальных образцах кварца.

| Образец, № | Эффективный флюенс нейтронов, $\cdot 10^{10}$ н/см ² | Средняя энергия нейтронов, МэВ | Коэффициент пересчета (н/см ²)/сГр $\cdot 10^8$ |
|------------|---|--------------------------------|---|
| 1 | 3,3 | 0,71 | 3,1 |
| 2 | 2,6 | 0,64 | 3,4 |
| 3 | 2,0 | 0,53 | 3,9 |
| 4 | 1,6 | 0,24 | 7,2 |
| 5 | 0,9 | 0,66 | 3,3 |
| 6 | 0 | 0 | 0 |

Табл.2. Расчет тканевых доз в образцах кварца.

| Образец, № | Расчетная доза нейтронов, сГр | Экспозиционная доза гамма-излучения, Р (\approx сГр) | Итоговая поглощенная доза в образце, сГр |
|------------|-------------------------------|---|--|
| 1 | 106,45 | 33,2 | 139,7 |
| 2 | 76,47 | 52,9 | 129,4 |
| 3 | 51,28 | 79,0 | 130,3 |
| 4 | 22,22 | 103,5 | 125,7 |
| 5 | 28,57 | 122,5 | 151,1 |
| 6 | 0 | 150,1 | 150,1 |

образцов №1 – №5 проведено в поле тормозного излучения ускорителя ЛУ-10-20.

Дозы в образцах кварца, облученных в смешанных гамма-нейтронных полях с различными соотношениями флюенса нейтронов и дозы гамма-излучения, образуют равномерный ряд убывания нейтронной составляющей и возрастания гамма-составляющей излучения.

Тканевая доза нейтронов определена по средней энергии нейтронного излучения реактора (для каждого образца) пересчетом флюенса в тканевую дозу (табл.1) с помощью эмпирической зависимости коэффициента пересчета флюенс–доза от энергии нейтронов [7].

В результате пересчета флюенса нейтронов и нормировки гамма-доз можно вывести величину облучения экспериментальных образцов кварца в единицах тканевой поглощенной дозы (табл.2).

На основании этой таблицы для каждого образца кварца рассчитано соотношение компонентов облучения (табл.3).

Табл.3. Определенные соотношения дозы нейтронов к дозе гамма-облучения в облученных образцах кварца.

| Образец, № | Отношение дозы нейтронов к дозе гамма-излучения, отн.ед. |
|------------|--|
| 1 | 3,21 |
| 2 | 1,45 |
| 3 | 0,65 |
| 4 | 0,23 |
| 5 | 0,22 |
| 6 | 0,00 |

Метод определения дозовых откликов

Для определения кривых термовысвечивания кварца, облученного в гамма-нейтронных полях, применялись три температуры термоактивации: 250–270°C, 320–340°C, 400–420°C. Первая температура выбрана на основании того, чтобы при термоактивации не было смешивания с областью высвечивания 100–150°C. Диапазон 400–420°C является оптимальным для гамма-дозиметрии по кварцу. Средняя температура 330°C – промежуточная температура термоактивации.

Для каждого образца кварца при всех температурах термоактивации были определены светосуммы 100-градусного пика. Для этого проба образца массой 40 мг нагревалась до 150°C для очистки зарядовой области для пика 100°C. Затем определялся термолюминесцентный отклик от тестовой дозы 0,2 сГр для его последующего вычитания. Следующим этапом был нагрев и удерживание в течение 5 минут одной из трех температур термоактивации. После остывания до комнатной температуры кварц облучался тестовой дозой и без задержек определялся световыход в диапазоне до 100°C. Затем проба образца последовательно облучалась тремя добавочными дозами γ -излучения по 20 сГр. После каждого облучения проба была термоактивирована, после чего определялся световыход с помощью тестовой дозы.

В результате были определены функции термовысвечивания для всех образцов при

всех температурах термоактивации: для тестовой дозы без термоактивации, после термоактивации и после последовательного приложения трех добавочных доз.

Математическая обработка результатов

Для расчета дозовых откликов был составлен алгоритм с применением квадратичной экстраполяции. Опишем представление о световыходе Y_i после i -й термоактивации в зависимости от полной добавочной дозы D_i (здесь i – номер термоактивации: 1 – 270°C, 2 – 330°C и 3 – 400°C) квадратичной зависимостью:

$$Y_i = a \cdot D_i^2 + b \cdot D_i + c, \quad (1)$$

где Y_i – квадратичное представление световыхода после i -й термоактивации, D_i – суммарная добавочная доза, a , b и c – искомые коэффициенты.

Для решения (1) и нахождения коэффициентов a , b и c запишем функционал невязок:

$$F = \sum_i^3 (Y_i - S_{n_i})^2, \quad (2)$$

где S_{n_i} – измеренный термолюминесцентный световыход после i -й термоактивации.

Минимизируя функционал (2) по искомым коэффициентам, находим их. Следующей задачей будет составить уравнение для расчета дозовых откликов для преддозы (*latens dose*) D_{Li} после i -й термоактивации. Для этого приравняем дозовый отклик преддозы к светосумме от тестовой дозы без термоактивации:

$$a \cdot D_{Li}^2 + b \cdot D_{Li} + c = S_0, \quad (3)$$

где S_0 – термолюминесцентный световыход без термоактивации (светосумма от тестовой дозы), D_{Li} – преддоза при i -й термоактивации.

Для объяснения математических операций можно привести графическую модель определения преддозы (рис.1).

Как видно из рис.1, если экстраполировать линию величины световыхода после термоактиваций и добавочных доз до уровня световы-

хода без термоактивации, то можно определить преддозовый отклик.

Решая полученное квадратное уравнение (3), находим искомые преддозовые отклики всех образцов кварца для всех режимов термоактивации.

В дальнейшем переобозначим D_{Li} для образца k через D_{ik} (полный дозовый отклик образца k после термоактивации i).

Сопоставляя информацию о дозовых откликах и об отношении компонентов смешанного облучения в поглощенной дозе для каждого образца кварца, можно обнаружить, что преддозовые отклики от гамма-облучения имеют большую зависимость от температуры чем дозовые отклики от нейтронного облучения. Таким образом, наблюдается различие в ходе дозовых откликов для нейтронов и гамма-излучения при изменении температуры термоактивации (рис.2).

Различие в ходе дозовых откликов от нейтронного и гамма-излучений можно использовать для разделения компонентов дозы смешанного облучения.

Рис.2. Ход дозовых откликов при разной температуре термоактивации.

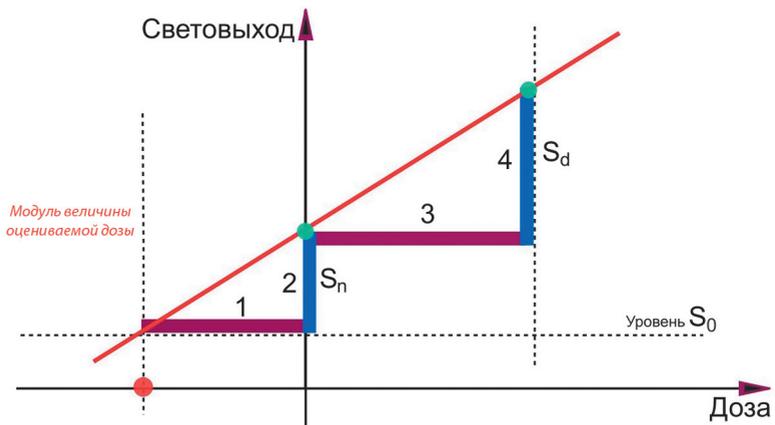
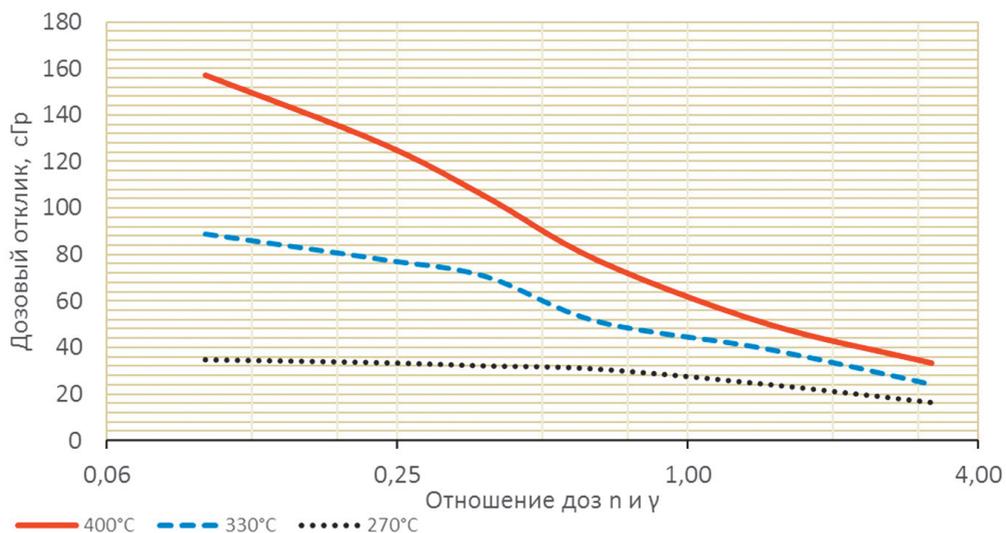


Рис.1. Графическая интерпретация отношения световых выходов, искомой и добавочной доз. 1 – неизвестная доза (преддоза), 2 – световыход после термоактивации S_n , 3 – добавочная доза D , 4 – световыход после термоактивации с приложением добавочной дозы S_d , уровень S_0 – световыход без термоактивации.

Для определения неизвестных доз необходимо определить коэффициенты чувствительности при i -й термоактивации для гамма и нейтронной компонент смешанного облучения и ввести их в функционал относительных квадратичных невязок (Q_i) измеренных дозовых откликов и неизвестных дозовых нагрузок смешанного гамма-нейтронного излучения при выбранных температурах термоактивации (4). Для составления функциональной зависимости понадобятся данные по полным дозовым откликам, расчет которых описан выше.

$$Q_i = \sum_{k=1}^{k_{\max}} \left(\frac{d_{nk}}{D_{ik}} \cdot a_i + \frac{d_{yk}}{D_{ik}} \cdot b_i - 1 \right)^2, \quad (4)$$

где Q_i – функционал невязок (отклонений), i – порядковый номер термоактивации образца кварца, k – порядковый номер образца, d_{nk} – доза нейтронов в образце k (сГр), d_{yk} – доза гамма-излучения в образце k (сГр), D_{ik} – полный дозовый отклик образца k при термоактивации i (сГр), a_i – коэффициент чувствительности к нейтронам (отн.ед.) при i -й термоактивации, b_i – коэффициент чув-

ствительности к гамма-излучению (отн.ед.) при i -й термоактивации.

Минимизируя функционал (4) по коэффициентам чувствительности a_i и b_i , находим последние, что позволит определять дозы смешанного гамма-нейтронного облучения с разделением по компонентам.

В продолжение данных научных исследований будет проведена отдельная оценка вкладов компонентов в поглощенную дозу гамма-нейтронного облучения кварца.

Литература

1. ГОСТ 22.8.08-2001. Метод определения поглощенной дозы внешнего гамма-излучения по термолуминесценции кварца строительной керамики. Порядок проведения измерений. М.: Госстандарт России, 2001.
2. Хютт Г.И. и др. Разработка методов аварийной дозиметрии на основе природных материалов и реконструкция радиационной ситуации в 30-километровой зоне Чернобыльской АЭС. Отчет по НИР. АН Эстонской Республики. Институт геологии. Таллин, 1991.
3. J. Zimmerman, *The radiation-induced increase of thermo luminescence sensitivity of fired quartz J*, Phys.C: Solid State Physics, 4, pp. 3277-3291, 1971.
4. Попов В.И., Портман А.И., Сакович В.А., Масляев П.Ф. Возможности реконструкции поглощенной дозы нейтронов по термолуминесценции кварца строительной керамики // АНРИ. 2005. № 3(42). С. 43-44.
5. Портман А.И., Потемкин А.М. О ретроспективной дозиметрии смешанных гамма-нейтронных полей излучения // АНРИ. 2017. № 4(91). С. 31-35.
6. СанПиН 2.6.1.2523-09. Нормы радиационной безопасности НРБ-99/2009. М.: Федеральный центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора, 2009.
7. Шальнов М.И. Тканевая доза нейтронов. М.: Атомиздат, 1960.

About the Retrospective Dosimetry of Mixed Gamma-Neutron Radiation Fields

Portman Anatoly, Potyomkin Alexander (Federal State Unitary Enterprise Scientific and Technical Center for radiation and chemical safety and health of Federal Medical-Biological Agency of Russia, Moscow, Russia)

Abstract. The article describes research on the development of a method for doses retrospective determination of gamma-neutron irradiation with separation into components has basing on thermostimulated luminescence of quartz. Confirmation of the hypothesis about the different course of dose responses from neutron radiation and gamma radiation under different conditions of building ceramics quartz's thermal activation is given. The possibility of separation of luminescent signals in quartz caused by gamma radiation or neutron radiation is shown.

Key words: *retrospective dosimetry of neutron radiation, thermally stimulated luminescence, monitoring of current and emergency radiation situation.*

А.И.Портман (к.т.н., зав.лаб.), А.М.Потемкин (н.с.) – ФГУП НТЦ РХБГ ФМБА России, г. Москва.

Контакты: тел. +7 (499) 193-74-17; e-mail: a.portman2013@yandex.ru.