

ПРИМЕНЕНИЕ ХИМИЧЕСКОГО ДОЗИМЕТРА ФРИККЕ И ЕГО МОДИФИКАЦИЙ ДЛЯ ДОЗИМЕТРИИ ГАММА-НЕЙТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ИМПУЛЬСНОГО РЕАКТОРА

В.И. Потетня, Е.В. Корякина, М.В. Трошина, С.Н. Корякин

Медицинский радиологический научный центр им. А.Ф. Цыба – филиал ФГБУ

«Национальный медицинский исследовательский центр радиологии»

Министерства здравоохранения РФ

249036, Калужская обл., г. Обнинск, ул. Королева, 4



Исследованы характеристики химического дозиметра Фрикке (стандартного состава (Д1), без добавления NaCl в состав раствора (Д2), без NaCl и с увеличенной в 10 раз концентрацией Fe²⁺ (Д3)) при облучении непрерывным и импульсным со сверхвысокой мощностью дозы излучением реактора БАРС-6 с открытыми активными зонами.

В диапазоне доз 25 – 750 Гр чувствительность дозиметров зависела от дозы γ -нейтронного излучения линейно и составляла $1,96 \pm 0,05$ мкГр⁻¹ (Д1), $2,04 \pm 0,05$ мкГр⁻¹ (Д2) и $2,08 \pm 0,5$ мкГр⁻¹ (Д3) в непрерывном режиме облучения и соответственно $1,24 \pm 0,05$ мкГр⁻¹, $2,00 \pm 0,05$ мкГр⁻¹, $1,94 \pm 0,05$ мкГр⁻¹ – в импульсном. Это составляет $\approx 60\%$ их чувствительности к γ -излучению ⁶⁰Co ($3,40 \pm 0,02$ мкГр⁻¹), но для стандартного дозиметра Фрикке в импульсном режиме – в 1,6 раза меньше, 36%. Экспериментальное значение радиационно-химического выхода $G(\text{Fe}^{3+})$ для всех вариантов раствора и обоих режимов облучения изменялось незначительно, и в среднем составило $0,84 \pm 0,11$ мкМ/Дж, за исключением стандартного раствора в импульсном режиме ($0,66 \pm 0,07$ мкМ/Дж). Дозы нейтронов, определенные химическими и активационными дозиметрами, в пределах погрешностей совпадали, но показания первых были систематически выше примерно на 20%.

Таким образом, в диапазоне мощностей доз нейтронов спектра деления $0,4 - 7 \cdot 10^8$ Гр/мин эффект мощности дозы отсутствует как в стандартном без добавления NaCl варианте дозиметра Фрикке, так и в модифицированном, что позволяет использовать их для оценки физико-дозиметрических характеристик пучков смешанного γ -нейтронного излучения.

Ключевые слова: ферросульфатный дозиметр Фрикке, быстрые нейтроны, гамма-излучение, сверхвысокая мощность дозы, реактор БАРС-6.

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в медицине, прежде всего в онкологии, используются практически все виды электромагнитных и ионизирующих излучений. Все большее применение в лучевой терапии больных с радиорезистентными злокачественными новообразованиями разных локализаций находят установки с высокой линейной передачей энергии (ЛПЭ) излучений благодаря более высокой их относительной биологической эффективности (ОБЭ) по сравнению со стандартным гамма-излучением. В первую очередь, это ускорители

© В.И. Потетня, Е.В. Корякина, М.В. Трошина, С.Н. Корякин, 2021

тели ионов углерода-12 [1]. Свою пока небольшую нишу занимают источники нейтронного излучения, эффективность которого в схемах γ -нейтронного воздействия показана рядом исследований [2 – 5], в том числе и специалистами МРНЦ им. А.Ф. Цыба при лечении онкологических больных на реакторе БР-10 [6 – 8].

Возрастает интерес к изучению импульсных нейтронных воздействий, обусловленный как фундаментальными аспектами, так и некоторыми актуальными практическими задачами. В фундаментальном плане – это изучение быстро протекающих биологических и радиобиологических процессов, определение ОБЭ излучений с высокой и сверхвысокой мощностью дозы [2, 9]. Весьма разнообразны прикладные задачи. На основании теоретических предпосылок обосновывается целесообразность применения излучений со сверхвысокой мощностью дозы, в том числе импульсных излучений, для повышения эффективности лучевой терапии – так называемая флэш-терапия [10 – 12]. В связи с этим возникают новые задачи дозиметрии, для решения которых наряду с ионизационными большое применение получают методы, основанные на использовании жидких и твердых сцинтилляторов, полупроводников, люминесцентных, а также химических дозиметров. В последних используют химические изменения, происходящие в некоторых веществах под действием радиации. Одним из таких дозиметров является ферросульфатный дозиметр Фрикке, который применяется при дозиметрии γ -излучения и электронов в диапазоне доз от 0,05 до 2000 Гр и мощностей доз до 250 Гр/мин [13, 14].

Потоки быстрых и промежуточных нейтронов часто сопровождаются γ -квантами, поэтому основная проблема дозиметрии быстрых и промежуточных нейтронов состоит в отделении эффекта от сопутствующего γ -излучения, поскольку их радиобиологическое действие различно. Это осуществляется в большинстве случаев использованием двух типов дозиметров, один из которых обладает минимальной чувствительностью к нейтронам и позволяет оценить вклад γ -излучения. При действии быстрых нейтронов на биологический объект поглощенная доза обусловлена в преобладающей степени протонами отдачи, поэтому желательно использовать в качестве химических систем водные растворы тех или иных соединений или органические соединения, близкие по составу к ткани. Наиболее распространенная из водных растворов неорганических соединений ферросульфатная система отвечает этому требованию, но обнаруживает зависимость от ЛПЭ-излучения, поэтому используется для точных измерений дозы быстрых нейтронов в тех случаях, когда их энергетический спектр известен. В работе [14] представлена зависимость радиационно-химического выхода $G(\text{Fe}^{3+})$ от энергии нейтронов в интервале 0,1 – 14 МэВ. Показано, что в интервале 0,1 – 1,5 МэВ он меняется в пределах $\pm 6\%$, а в интервале 1,5 – 14 МэВ – в пределах $\pm 15\%$.

Если спектр нейтронов неизвестен, ферросульфатный дозиметр позволяет измерять тканевые дозы промежуточных и быстрых нейтронов ($E_n < 20$ МэВ) с дополнительной погрешностью $\pm 20\%$ и с меньшей погрешностью при наличии ограниченных сведений о спектре [14]. В комплексе с каким-либо другим методом, обладающим низкой относительной чувствительностью к нейтронам по сравнению с чувствительностью к γ -излучению, например, термолюминесцентным, эта система позволяет определять суммарную тканевую дозу γ -нейтронного излучения и вклад в нее нейтронов.

Целью работы являлось исследование характеристик химических дозиметров Фрикке, различающихся по составу, при облучении непрерывным и импульсным со сверхвысокой мощностью дозы излучением реактора БАРС-6.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Приготовление химических дозиметрических растворов

Для приготовления стандартного дозиметрического раствора Фрикке соль Мора (550 мг) растворяли в небольшом количестве трижды дистиллированной воды, добав-

ляли 55 мг NaCl и перемешивали до полного растворения. В полученный раствор добавляли серную кислоту (22 мл) и доводили объем дозиметрического раствора до 1 л тридистиллированной водой. Для облучения на импульсном реакторе БАРС-6 готовили также стандартный раствор без добавления NaCl, так как его присутствие может снижать величину выхода ионов Fe^{3+} $G(Fe^{3+})$ [13, 15, 16], и модифицированный дозиметр Фрикке для дозиметрии излучения со сверхвысокой мощностью дозы ($\sim 1 \cdot 10^6$ Гр/мин), в котором помимо исключения из состава NaCl увеличивали концентрацию железа Fe^{2+} в десять раз, до $1 \cdot 10^{-2}$ М. Приготовленные растворы оставляли на 12 ч в темном месте при комнатной температуре, затем помещали в холодильник (при хранении в холодильнике показания дозиметра стабильны в течение одного года). Перед применением дозиметрическим растворам давали нагреться до комнатной температуры.

Калибровка дозиметрических растворов

Соответствие дозиметрических параметров приготовленных растворов Фрикке стандартным характеристикам проверяли при действии γ -излучения ^{60}Co (мощность дозы ~ 43 Гр/мин) в диапазоне доз 10 – 150 Гр. Измерения оптической плотности облученных растворов проводили при длине волны 304 нм и спектральной ширине щели 2,5 нм в кюветах из кварцевого стекла с толщиной поглощающего слоя 1 см. Контрольным раствором для измерения служила необлученная дозиметрическая система.

Облучение нейтронами

Химические дозиметры Фрикке облучали в пластмассовых пробирках объемом 4 мл нефилтрованным излучением в импульсном и непрерывном режимах работы реактора БАРС-6 (ГНЦ РФ-ФЭИ им. А.И. Лейпунского, Обнинск). Пробирки с дозиметрическими растворами (рис. 1) располагали на вертикальном стержне, укрепленном между активными зонами (а.з.), на высоте 100 – 1500 мм от оси, соединяющей центры а.з. При этом их размещали в одних и тех же позициях, что обеспечивало идентичные физико-дозиметрические условия облучения в обоих режимах.

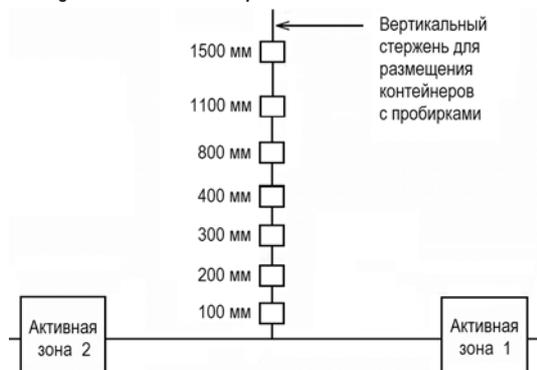


Рис. 1. Схема облучения химических дозиметров Фрикке на реакторе БАРС-6 в импульсном и непрерывном режимах

Длительность облучения в непрерывном режиме работы реактора составляла ~ 60 мин, в режиме одиночного импульса $\sim 65 - 70$ мкс. В позициях расположения дозиметров Фрикке в зависимости от расстояния до а.з. реактора дозы нейтронов изменялись в интервале $\sim 25 - 750$ Гр при мощности дозы в непрерывном режиме $0,4 - 13$ Гр/мин и в импульсном $(0,2 - 7) \cdot 10^8$ Гр/мин. Число делений в а.з. было примерно одинаковым для обоих режимов в парных экспериментах и контролировалось персоналом реактора с точностью $\pm 2\%$ [9]. Поглощенные тканевые дозы нейтронов и γ -излучения измеряли сотрудники реактора с помощью соответственно активационного детектора из никеля и термолюминесцентных дозиметров. Погрешность измерений оценена в 16% (D_n) и 30% (D_γ) при доверительной вероятности $P = 0,95$ [17].

Расчет доз и радиационно-химического выхода дозиметрического раствора в полях смешанного γ -нейтронного излучения

При проведении дозиметрии смешанного γ -нейтронного излучения стандартным методом пары дозиметров [13] химические дозиметры представляют собой компонент пары, более чувствительный к нейтронам. В качестве дозиметра, чувствительного к γ -излучению, использовали термолюминесцентный дозиметр (ТЛД) ИКС-А [18]. Учитывая, что показания химического дозиметра (оптическая плотность) представляют сумму нейтронной и γ -составляющих, получим систему из двух уравнений для определения нейтронного и γ -компонента дозы смешанного излучения:

$$S_{\gamma+n}^{p-p} = S_{\gamma}^{p-p} + S_n^{p-p} = \alpha_{\gamma}^{p-p} D_{\gamma} + \alpha_n^{p-p} D_n, \quad (1)$$

$$D_{\text{ТЛД}} = \alpha_{\gamma}^{\text{ТЛД}} D_{\gamma} + \alpha_n^{\text{ТЛД}} D_n, \quad (2)$$

где $S_{\gamma+n}^{p-p}$ – относительная оптическая плотность дозиметрического раствора; S_{γ}^{p-p} – оптическая плотность, обусловленная вкладом γ -компонента в дозу; S_n^{p-p} – оптическая плотность, обусловленная вкладом нейтронов в дозу; α_{γ}^{p-p} , $\alpha_{\gamma}^{\text{ТЛД}}$ – чувствительность химического дозиметра и ТЛД к γ -излучению; α_n^{p-p} , $\alpha_n^{\text{ТЛД}}$ – чувствительность химического дозиметра и ТЛД к нейтронам; $D_{\text{ТЛД}}$ – доза по показаниям ТЛД; D_{γ} , D_n – дозы, обусловленные вкладом γ -составляющей и нейтронов.

Решая систему уравнений (1), (2), получим

$$D_n = (S_{\gamma+n}^{p-p}/\alpha_{\gamma}^{p-p} - D_{\text{ТЛД}}) / (G_n/G_{\gamma} - \alpha_n^{\text{ТЛД}}/\alpha_{\gamma}^{\text{ТЛД}}), \quad (3)$$

где G_n , G_{γ} – радиационно-химический выход ионов Fe^{3+} после воздействия нейтронов и γ -излучения.

Чувствительность химического дозиметра к γ -излучению и нейтронам

$$\alpha_{\gamma} = \Delta S_{\gamma}/D_{\gamma} = G_{\gamma}(\text{Fe}^{3+})\epsilon l \rho, \quad (4)$$

$$\alpha_n = \Delta S_n/D_n = G_n(\text{Fe}^{3+})\epsilon l \rho = \alpha_{\gamma} G_n(\text{Fe}^{3+})/G_{\gamma}(\text{Fe}^{3+}). \quad (5)$$

Чувствительность дозиметра Фрикке к γ -излучению составляет $34,9 \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$ при стандартных параметрах: $G(\text{Fe}^{3+}) = 1,607 \cdot 10^{-6} \text{ моль/Дж}$; молярный коэффициент экстинкции ионов Fe^{3+} при длине волны 304 нм и температуре 20°C $\epsilon = 2121 \text{ л/(моль}\cdot\text{см)}$; толщина поглощающего слоя $l = 1 \text{ см}$; плотность раствора $\rho = 1,024 \text{ кг/л}$.

Радиационно-химический выход $G(\text{Fe}^{3+})$ для нейтронов определяется из чувствительности раствора α_n (5) их действию:

$$G_n(\text{Fe}^{3+}) = \Delta S_n/(\epsilon l \rho D_n). \quad (6)$$

При расчете доз нейтронов по формуле (3) на основании зависимости $G_n(E)$ [19, 20] определяли среднюю величину G_n для спектров нейтронов из а.з. реактора БАРС-6 в точках облучения, используя собственные расчеты и опубликованные данные [21]:

$$G_n(E) = \sum_E G_n(E) \cdot K(E) \cdot N(E) dE / \sum_E K(E) \cdot N(E) dE, \quad (7)$$

где $K(E)$ – керма в ферросульфатном растворе для нейтронов с энергией E ; $N(E)dE$ – число нейтронов с энергиями от E до $E+dE$.

При проведении расчетов спектров нейтронов (с помощью MCNP-5) учитывали форму и размеры активных зон реактора, их расположение в реакторном зале, его размеры, стены [17, 21], геометрию размещения облучаемых образцов. Относительная групповая погрешность расчета спектра нейтронов не превышала 5% для диапазона 0,1 – 4 МэВ и 10% для диапазона от 4 до 10 МэВ. Статистическая погрешность суммарного по энергии флюенса $\leq 1,5\%$.

Поправки на зависимость прямо пропорционального радиочувствительности дозиметрического раствора коэффициента молярной экстинкции дозиметра от температуры во время облучения и при измерении оптической плотности вводили на основании данных из [13].

Статистическая обработка результатов

При обработке экспериментальных данных использовали стандартные методы статистического анализа. Анализ дозовых зависимостей проводили с помощью модели линейной регрессии методом наименьших квадратов (Microcal Origin 6.1). Оценку погрешности величин типа $Z = f(x_1, \dots, x_k)$, где $Z = D_n(\text{Fe})$ или $G_n(\text{Fe}^{3+})$, проводили с использованием метода частных производных для случая некоррелированных составляющих погрешности:

$$\sigma(Z) = \sqrt{\sum_i^k \sigma_i^2(Z)} = \sqrt{\sum_i^k \left(\frac{\partial Z}{\partial x_i} \right)^2 \sigma^2(x_i)}. \quad (8)$$

Достоверность полученных результатов и значимость их различий между ними оценивали с помощью t -критерия Стьюдента.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Перед применением дозиметрических растворов для исследования их характеристик в полях импульсного реакторного излучения необходимо было убедиться, что их дозиметрические параметры при действии γ -излучения соответствуют стандартным. Для этого была проведена калибровка использованных в работе химических дозиметров на радиационной установке с источником ^{60}Co с известными дозиметрическими характеристиками.

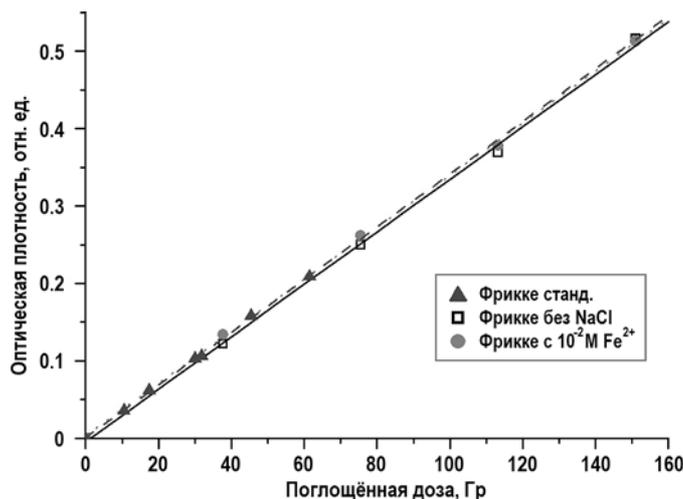


Рис. 2. Зависимость оптической плотности трех вариантов дозиметра Фрикке от дозы γ -излучения ^{60}Co

На рисунке 2 представлены зависимости изменения оптической плотности трех вариантов дозиметра Фрикке. В исследованном диапазоне доз оптические плотности дозиметров аппроксимируются прямыми, проходящими через начало координат, которые в пределах погрешностей совпадают. Коэффициенты уравнений линейной регрессии составляют $(34,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$ для стандартного раствора, $(33,9 \pm 0,7) \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$ для раствора без NaCl в составе и $(33,6 \pm 0,5) \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$ для раствора с концентрацией ионов $\text{Fe}^{2+} 1 \cdot 10^{-2} \text{ М}$ без NaCl. С точностью до 3,5% экспериментальные данные совпадают с величиной чувствительности стандартного дозиметрического раствора Фрикке к излучению ^{60}Co , $34,9 \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$ [13]. Различия экспериментальных и взятого из литературы значений могут быть обусловлены несколькими факторами: погрешностью измерения дозы излучения ^{60}Co (10% при $P = 0,95$), отличающейся величиной $\epsilon(\text{Fe}^{3+})$ для использованного в работе спектрофотометра, микропримесями в химических реактивах, а также их комбинацией.

Результаты экспериментов по изучению влияния режима облучения (импульсного или непрерывного) на показания стандартного ферросульфатного дозиметра Фрикке и ра-

створов с измененным составом представлены на рис. 3.

Регрессионная зависимость оптической плотности дозиметрических растворов от суммарной поглощенной дозы излучения реактора является линейной для всех вариантов облучения. При этом оптическая плотность стандартного дозиметра Фрикке при дозах ниже 100 Гр совпадает при обоих режимах облучения. При более высоких дозах оптическая плотность в импульсном режиме облучения снижается в 1,5 раза (наклоны кривых соответственно $(19,6 \pm 0,5) \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$ и $(12,4 \pm 0,5) \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$). Показания дозиметрических растворов без NaCl, а также с повышенной концентрацией Fe^{2+} практически не отличаются один от другого как при непрерывном облучении ($(20,4 \pm 0,5) \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$ и $(20,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$), так и импульсном ($(20,8 \pm 0,5) \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$ и $(19,4 \pm 0,5) \cdot 10^{-4} \text{ Гр}^{-1}$), а также от показаний стандартного дозиметра Фрикке при непрерывном режиме облучения.

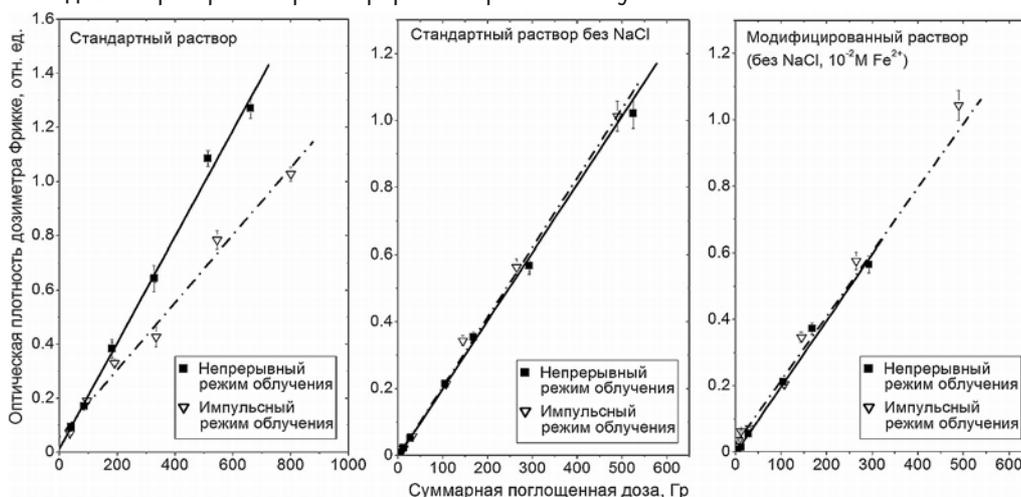


Рис. 3. Зависимость оптической плотности трех вариантов дозиметра Фрикке от дозы нейтронов при облучении на реакторе БАРС-6 в непрерывном и импульсном режимах

Чувствительность дозиметрических растворов к реакторному излучению составляла около 60% при облучении в непрерывном режиме, а у растворов с измененным составом – и в импульсном режиме, и около 40% для стандартного раствора в импульсном режиме. Излучение реактора в условиях экспериментов было преимущественно нейтронным, вклад γ -излучения составлял от $\approx 5\%$ на расстояниях $\leq 0,3$ м от активных зон до 18% и более на расстояниях $> 0,85$ м за счет относительного увеличения вклада вторичного γ -излучения из стен. Полученные результаты подтверждают возможность использования дозиметра Фрикке для дозиметрии высокоинтенсивных потоков нейтронного и смешанного γ -нейтронного излучения при незначительной модификации состава раствора – исключении NaCl из раствора и дополнительно в повышении концентрации Fe^{2+} [13, 15]. Однако применение растворов без NaCl повышает требования к качеству химических реактивов и технологии приготовления раствора, условиям проведения экспериментов, чтобы избежать случайного внесения органических примесей в раствор.

Важными вопросами при использовании дозиметра Фрикке в дозиметрии смешанного γ -нейтронного излучения является определение вклада γ -излучения в суммарную дозу и величины радиационно-химического выхода Fe^{3+} для нейтронной составляющей дозы. Благодаря тому, что в каждой точке облучения пробирок с дозиметрическим раствором были размещены дозиметры-свидетели (никелевые детекторы и ТЛД ИКС [17, 18]), по их показаниям рассчитаны величины тканевой кермы нейтронов и тканевой дозы γ -излучения. На основании формул (1), (7) были определены экспериментальные значения $G_n(\text{Fe}^{3+})$ и отношение G_n/G_γ для разных вариантов состава дозиметра Фрикке. При облучении в непрерывном режиме величина G_n/G_γ составила соответственно 0,54

(100%), 0,52 (3%) и 0,51 (6%) для дозиметра Фрикке стандартного состава без NaCl и с повышенной концентрацией двухвалентного железа и также без NaCl. При облучении в импульсном режиме соответствующие величины G_n/G_γ составили 0,41 (25%), 0,51 (5%), 0,54 (0%). Как видно, величина $G_n(\text{Fe}^{3+})$ для всех вариантов состава раствора и обоих режимов облучения изменялась незначительно (за исключением данных для стандартного раствора в импульсном режиме) и в среднем составила $0,84 \pm 0,11$ мкМ/Дж. Погрешность определения радиационно-химического выхода оценивается в 11% ($P = 0,63$) и, в основном, обусловлена статистической погрешностью дозы нейтронов, а также парциальной оптической плотности дозиметрического раствора при действии нейтронов. Последние обусловлены погрешностями определения флюенса быстрых нейтронов (8% [17]), погрешностью значения удельной тканевой кермы нейтронов спектра деления (5%), дозы γ -излучения (15% [17]), а также спектрофотометра ($\leq 1\%$) и коэффициента молярной экстинкции (2%). С учетом погрешности значения радиационно-химического выхода $G_n(\text{Fe}^{3+})$ в растворах разного состава при облучении в обоих режимах не отличаются, в том числе для раствора стандартного состава, оптическая плотность которого различалась в 1,5 раза при облучении в непрерывном и импульсном режимах.

Для несколько более жесткого спектра нейтронов деления ^{252}Cf ($E_{\text{cp}} = 2,15$ МэВ) было определено значение $G_n(\text{Fe}^{3+}) = 0,78 \pm 0,11$ мкМ/Дж или $G_n/G_\gamma = 0,48$ [22]. Это на 10,5 – 12% ниже полученных значений в работе для нейтронов реактора БАРС-6, средняя энергия спектра утечки которых $\leq 1,44$ МэВ [17, 21], но согласуется с ними с учетом взаимных погрешностей 22 и 14,7%. Для более мягкого спектра нейтронов деления пучка Б-3 реактора БР-10 со средней энергией 0,85 МэВ экспериментальное значение $G_n(\text{Fe}^{3+}) = 0,70 \pm 0,04$ мкМ/Дж, или $G_n/G_\gamma = 0,44$ [19]. Завышенные по сравнению с данными [19, 22] значения $G_n(\text{Fe}^{3+})$ могут быть обусловлены, как следует из формулы (7), заниженными экспериментальными оценками доз γ -излучения и нейтронов. Результаты расчета [21] показывают, что γ -кванты с энергиями 1 – 10 МэВ составляют до половины суммарного спектра, что может приводить к занижению дозы ТЛД ИКС-А из-за нарушения условий электронного равновесия. Использование порогового никелевого детектора ($E_{\text{пор}} = 2,5 - 3$ МэВ) для оценки флюенса всего спектра нейтронов деления [17] и кермы всего спектра также могли привести к занижению доз нейтронов, что заметно проявилось, например, на больших расстояниях от активных зон, превышающих 6 м [9].

Величину радиационно-химического выхода $G_n(\text{Fe}^{3+})$ для нейтронов рассчитали также на основании его зависимости от энергии нейтронов [19, 20] для спектров нейтронов в месте размещения дозиметрических растворов. На расстояниях 0,25 – 0,6 м от а.з. реактора спектры изменялись незначительно, и расчетная величина $G_n(\text{Fe}^{3+})$ изменялась не более чем на 1,5%. Среднее значение $G_n(\text{Fe}^{3+})$ для растворов, облученных на этих расстояниях, составило 0,76 и 0,78 мкМ/Дж на основании данных [19, 20] соответственно, или $G_n/G_\gamma = 0,475$ и 0,485. Согласно оценкам [20], суммарная погрешность значения $G_n(\text{Fe}^{3+})$ составляла примерно 3% при энергиях выше 3,5 МэВ, 8% при энергиях около 1 МэВ и 30% при энергиях около 0,1 МэВ. Для спектра нейтронов деления погрешность оценивается в 10 – 12% ($P = 0,95$) [20].

Рассчитанные значения $G_n(\text{Fe}^{3+})$ и G_n/G_γ позволяют определить дозу нейтронов реактора БАРС, используя формулу (4) и результаты измерений ТЛД ИКС-А. Полученные таким образом дозы нейтронов сравнивали с дозами, определёнными с помощью никелевых детекторов [9, 17]. Результаты представлены на рис. 4 для двух режимов облучения (импульсный и непрерывный) для стандартного дозиметра Фрикке, стандартного без NaCl в составе и с увеличенной концентрацией железа Fe^{2+} . Погрешность расчетов оценивается в 20% ($P = 0,95$).

При облучении стандартного раствора в непрерывном режиме, а стандартного без NaCl и модифицированного растворов в обоих режимах значения доз нейтронов, оп-

ределенных химическим дозиметром, систематически превышают величину дозы, рассчитанную по измерениям активационным детектором. Наклоны регрессионных кривых в непрерывном режиме составляют $1,27 \pm 0,06$ (стандартный раствор), $1,21 \pm 0,06$ (стандартный без NaCl), $1,27 \pm 0,07$ (модифицированный), в импульсном режиме соответственно $0,76 \pm 0,04$, $1,29 \pm 0,07$ и $1,25 \pm 0,07$. С учетом погрешностей отличия отношения D_{Fe}/D_{Ni} от 1,0 по критерию Стьюдента статистически значимы для стандартного дозиметра Фрикке для обоих режимов облучения ($P > 0,99$), однако для стандартного раствора без NaCl и модифицированного рассчитанные величины доз не отличались значимо от определенных активационным методом. Использование дозиметра Фрикке стандартного состава (с $1 \cdot 10^{-3}$ М NaCl) для измерения дозы нейтронов спектра деления при высокой мощности дозы ($> 1,5 \cdot 10^8$ Гр/мин) приводит к занижению дозы нейтронов в среднем в 1,6 раза по сравнению с облучением при более низкой мощности дозы. Примерно такое же пороговое значение мощности дозы, при которой начинается снижение $G(Fe^{3+})$, отмечали при облучении электронами – примерно $1 \cdot 10^8$ Гр/мин [13]. Поэтому необходим осторожный подход к применению стандартного химического дозиметра Фрикке в дозиметрии нейтронного импульсного излучения с мощностью дозы, превышающей $1 \cdot 10^8$ Гр/мин. В то же время исключение из состава раствора NaCl, а также повышение концентрации Fe^{2+} до $1 \cdot 10^{-2}$ М приводят к независимости показаний ферросульфатной дозиметрической системы в диапазоне мощности дозы нейтронов от $0,2 \cdot 10^8$ до $7 \cdot 10^8$ Гр/мин и доз до 600 Гр (рис. 4), что подтверждает рекомендации по ее использованию для дозиметрии импульсного излучения [13, 16].

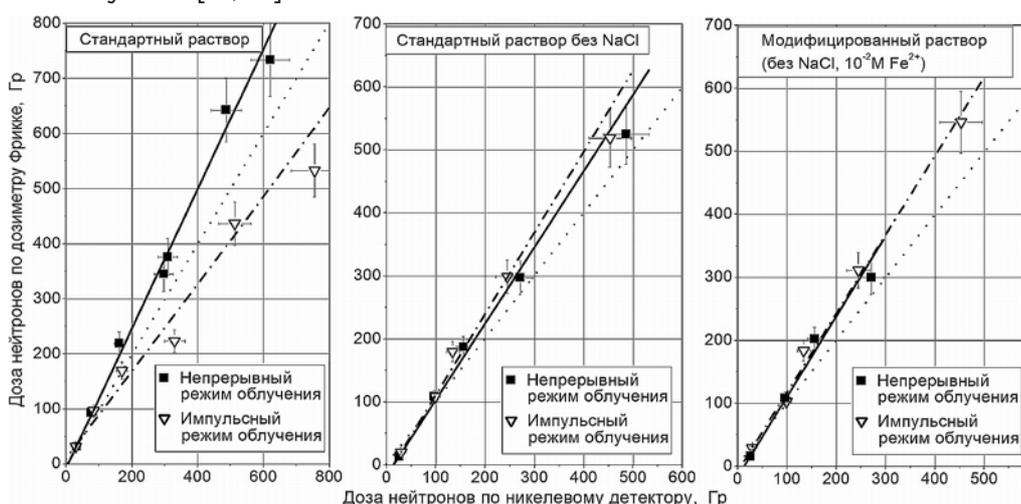


Рис. 4. Соотношение между дозами нейтронов, полученными по показаниям стандартного, стандартного без добавления NaCl и с увеличенной концентрацией ионов Fe^{2+} химических дозиметров и никелевого детектора при облучении в непрерывном и импульсном режиме. Пунктирная линия – равенство доз, определенных двумя методами

Заметные расхождения оценок доз нейтронов реактора БАРС-6, выполненных с помощью активационного и химического методов дозиметрии, в пределах 20 – 30% при суммарной погрешности каждого из методов около 20% ($P = 0,95$) затрудняют получение надежных оценок радиобиологических параметров биологических объектов (например, относительной биологической эффективности импульсного излучения) при проведении экспериментов на этом уникальном источнике γ -нейтронного излучения. Плодотворным оказался подход, связанный с проведением парных экспериментов по облучению в импульсном и непрерывном режимах с интервалом в одни сутки, когда облучаемые биологические или другие образцы располагаются в одних и тех же позициях, воспроизводимых с достаточно высокой точностью ($< 0,5\%$). При этом число делений в а.з. реактора подбирается примерно одинаковым и контролируется персоналом с точностью не хуже

2%. Однако это не исключает необходимости увеличивать точность активационного и химического дозиметров, в том числе за счет более широкого применения моделирования с использованием метода Монте Карло как для расчета спектров и энерговыделения нейтронов и γ -излучения [21], так и радиолитиза воды и водных растворов, включая дозиметр Фрикке, и его зависимости от ЛПЭ и типа заряженных частиц [23]. При теоретической оценке $G_n(\text{Fe}^{3+})$ также важно знать действующие спектры вторичных заряженных частиц в точке облучения химического дозиметра [18], рассчитывая их для конкретных условий облучения дозиметрического раствора, и энергетическую зависимость $G_n(\text{Fe}^{3+})$ для частиц с $Z = 1 - 6$ с энергией менее 20 МэВ и особенно ниже 0,2 МэВ, где отсутствуют экспериментальные данные.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты проведенных исследований показали, что химическая дозиметрическая система Фрикке и ее модификации (без NaCl в составе как со стандартной, так и с увеличенной до $1 \cdot 10^{-2}$ М концентрацией железа Fe^{2+}) могут быть использованы для дозиметрии смешанного γ -нейтронного излучения реакторов (в том числе и импульсного) в широком диапазоне мощностей доз от 0,4 до $7 \cdot 10^8$ Гр/мин и доз до 750 Гр.

Литература

1. Каприн А.Д., Ульяненко С.Е. Адронная терапия – точки развития. // Медицина: целевые проекты. – 2016. – № 23. – С. 56-59.
2. Важенин А.В., Рыкованов Г.Н., Мокичев Г.В., Кандакова Е.Ю., Мунасипов З.З., Степанова А.И., Астафьев Д.Н. Отдаленные результаты сочетанной фотонно-нейтронной терапии злокачественных опухолей головы и шеи в Уральском центре нейтронной терапии. // Сибирский онкологический журнал. – 2007. – Т. 24. – № 4. – С. 44-49.
3. Бобкова Г.Г., Важенин А.В., Кандакова Е.Ю., Важенин И.А., Мунасипов З.З. Оценка эффективности сочетанной фотонно-нейтронной терапии в паллиативном лечении метастатических опухолей головного мозга. // Паллиативная медицина и реабилитация. – 2012. – № 3. – С. 36-39.
4. Кандакова Е.Ю. Клинико-экспериментальное обоснование повышения эффективности сочетанной фотонно-нейтронной терапии опухолей головы и шеи. / Дисс. докт. мед. наук. – М.: ФГБУ «РНЦПР» Минздрава России, 2015. – 197 с.
5. Мусабеева Л.И., Чойнзонов Е.Л., Грибова О.В., Старцева Ж.А., Великая В.В., Лисин В.А. Нейтронная терапия в лечении радиорезистентных злокачественных новообразований. // Сибирский онкологический журнал. – 2016. – Т. 15. – № 3. – С. 67-71; DOI: <https://doi.org/10.21294/1814-4861-2016-15-3-67-71>.
6. Гулидов И.А., Мардынский Ю.С. Адроны в лучевой терапии опухолей головы и шеи. // Сибирский онкологический журнал. – 2006. – № S1. – С. 37.
7. Цыб А.Ф., Ульяненко С.Е., Мардынский Ю.С., Соколов В.А., Потетня В.И., Цыб Т.С., Капчигашев С.П., Гулидов И.А., Сысоев А.С. Нейтроны в лечении злокачественных новообразований. – Обнинск: БИСТ, 2003. – 112 с.
8. Гулидов И.А., Мардынский Ю.С., Смирнова И.А., Сысоев А.С., Аминов Г.Г. Сочетанная фотонно-нейтронная терапия в комплексном лечении больных раком молочной железы IIMV стадии. // Сибирский онкологический журнал. – 2004. – № 2-3. – С. 66-69.
9. Корякина Е.В. Цитогенетические эффекты излучения со сверхвысокой мощностью дозы. – Saarbrücken: LAP Lambert Academic Publishing. – 2014. – 168 с.
10. Symonds P., Jones G.D.D. FLASH Radiotherapy: The Next Technological Advance in Radiation Therapy. // Clinical Oncology. – 2019. – Vol. 31. – No. 7. – PP. 405-406; DOI: <https://doi.org/10.1016/j.clon.2019.05.011>.
11. Jin J.-Y., Gu A., Wang W., Oleinick N.L., Machtay M., Kong F.-M. Ultra-high Dose Rate Effect on Circulating Immune Cells: A Potential Mechanism for FLASH Effect? // Radiotherapy and Oncology. – 2020. – Vol. 149. – PP. 55-62; DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radonc.2020.04.054>.
12. Marlen P., Dahele M., Folkerts M., Abel E., Slotman B.J., Verbakel W. Bringing FLASH to

the Clinic: Treatment Planning Considerations for Ultrahigh Dose-rate Proton Beams. // International Journal of Radiation Oncology, Biology, Physics. – 2020. – Vol. 106. – No. 3. – PP. 621-629. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ijrobp.2019.11.011>.

13. *Пицаев А.К.* Дозиметрия в радиационной химии. – М.: Наука. – 1975. – 312 с.

14. *Соколова И.К.* Химические методы дозиметрии в радиобиологии. – М.: Атомиздат. – 1972. – 120 с.

15. *Пицаев А.К., Глазунов П.Я., Спицын В.И.* Механизм радиолитического окисления двухвалентного железа в водных серноокислых растворах, содержащих кислород, при высоких мощностях поглощенной дозы. // Докл. АН СССР. – 1963. – Т. 150. – № 5. С. 1077-1080.

16. *Klassen N.V., Shortt K.R., Seuntjens J., Ross C.K.* Fricke Dosimetry: the Difference between $G(\text{Fe}^{3+})$ for ^{60}Co γ -rays and High-Energy x-rays. // Physics in Medicine & Biology. – 1999. – Vol. 44. – PP. 1609-1624; DOI: <https://doi.org/10.1088/0031-9155/44/7/303>.

17. *Прохоров Ю.А., Кононов В.Н., Кувшинчиков М.А., Фокин Г.Н., Якубов П.А., Обатуров Г.М., Соколов В.А.* Дозиметрия на импульсном реакторе БАРС-6 // Атомная энергия. – 1998. – Т. 85. – Вып. 5. – С. 391-393; DOI: <https://doi.org/10.1007/BF02361103>.

18. *Бочвар И.А., Викторов Д.В., Ткаченко В.В., Трофимов В.М.* Применение термолюминесцентных стеклянных дозиметров ИКС для регистрации дозы гамма-излучения в гамма-нейтронных полях. // Радиобиология. – 1972. – Т. 12. – № 6. – С. 938-941.

19. *Капчигашев С.П., Потетня В.И., Потетня О.И.* Применение ферросульфатного раствора в дозиметрических исследованиях на пучках излучений реактора // Атомная энергия. – 1984. – Т. 56. Вып. 4. – С. 246-247; DOI: <https://doi.org/10.1007/BF01124201>.

20. *Lawson R.C., and Porter D.* The Response of the Ferrous Sulphate Dosimeter to Neutrons. // Physics in Medicine & Biology. – 1975. – Vol. 20. – No. 3. – PP. 420-430.

21. *Кураченко Ю.А., Матусевич Е.С., Прохоров Ю.А., Фокин Г.Н., Якубов П.А.* Расчетно-экспериментальное определение активности никелевых фольг в экспериментальном зале импульсного реактора БАРС-6. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2008. – № 3. – С. 57-64.

22. *Greene D., Law, J., and Major D.* The G-value for the Ferrous Sulphate Dosimeter for the Radiation From Californium-252. // Physics in Medicine & Biology. – 1973. – Vol. 18. – No. 6. – PP. 800-807; DOI: <https://doi.org/10.1088/0031-9155/18/6/302>.

23. *Autsavapromporn N., Meesungnoen J., Plante I., Jay-Gerin J.P.* Monte Carlo simulation study of the effects of acidity and LET on the primary free-radical and molecular yields of water radiolysis – Application to the Fricke dosimeter // Canadian Journal of Chemistry. – 2007. – Vol. 85. – Iss. 3. – PP. 214-229; DOI: <https://doi.org/10.1139/v07-021>.

Поступила в редакцию 19.02.2021 г.

Авторы

Потетня Владимир Иванович, старший научный сотрудник, канд. биол. наук
E-mail: potetnya@yandex.ru

Корякина Екатерина Владимировна, старший научный сотрудник, канд. биол. наук
E-mail: ek-koryakina@mrrc.obninsk.ru

Трошина Марина Вячеславовна, научный сотрудник
E-mail: troshina-m-v@mrrc.obninsk.ru

Корякин Сергей Николаевич, заведующий отделом, канд. биол. наук
E-mail: korsernic@mail.ru

APPLICATION OF THE FRICKE CHEMICAL DOSE METER AND ITS MODIFICATIONS FOR DOSIMETRY OF GAMMA-NEUTRON RADIATION OF A PULSE REACTOR

Potetnya V.I., Koryakina E.V., Troshina M.V., Koryakin S.N.

Tsyb Medical Radiological Research Center – Branch of the National Medical Research Radiological Center of the Ministry of Health of the Russia
4 Korolev Str., 249036 Obninsk, Kaluga Reg., Russia

ABSTRACT

The authors of the paper have studied the characteristics of the Fricke chemical dosimeter (of the standard composition (D1), without adding NaCl to the solution (D2), without NaCl and with a 10-fold increased concentration of Fe^{2+} (D3)) under irradiation with a dose rate up to $7 \cdot 10^8$ Gy/min at the BARS-6 burst-type reactor with two unshielded active zones operating either in a single pulse (65 – 70 μ s) mode or in a stationary (≈ 1 h) mode.

The dosimeter radiosensitivity (i.e., optical density per Gray) depended linearly on the dose of γ -neutron radiation in the range of 25 – 750 Gy, and was $1.96 \pm 0.05 \mu\text{Gy}^{-1}$ (D1), $2.04 \pm 0.05 \mu\text{Gy}^{-1}$ (D2), $2.08 \pm 0.5 \mu\text{Gy}^{-1}$ (D3) in the continuous irradiation mode and $1.24 \pm 0.05 \mu\text{Gy}^{-1}$, $2.00 \pm 0.05 \mu\text{Gy}^{-1}$, $1.94 \pm 0.05 \mu\text{Gy}^{-1}$ in the pulse mode, respectively. It was $\approx 60\%$ of their sensitivity to γ -radiation of ^{60}Co ($3.40 \pm 0.02 \mu\text{Gy}^{-1}$), but for a standard Fricke dosimeter irradiated in the pulsed mode, it was 1.6 times less, i.e., 36%. The experimental value of $G_n(\text{Fe}^{3+})$ for all the solutions and both modes of irradiation varied insignificantly and averaged $0.84 \pm 0.11 \mu\text{M/J}$ except for the standard solution in the pulsed mode ($0.66 \pm 0.07 \mu\text{M/J}$). The neutron doses determined by chemical and activation dosimeters agreed within the error limits, but the former were systematically higher by $\approx 20\%$.

Thus, in the range of neutron dose rates of the fission spectrum of $0.4 - 7 \cdot 10^8$ Gy/min, the effect of the dose rate is absent both in the standard version of the Fricke dosimeter (without NaCl) and in the modified version (with an increased concentration of Fe^{2+} ions). It makes possible to use the modified Fricke dosimeter for assessing the physical and dosimetric characteristics of mixed γ -neutron radiation beams with very high intensities.

Key words: Fricke ferrous sulphate dosimeter, fast neutrons, gamma radiation, ultra-high dose rate, BARS-6 pulse reactor.

REFERENCES

1. Kaprin A.D., Uliyanenko S.E. Hadron Therapy – Development Point. *Medicina: Celevye Proekty*. 2016, no. 23, pp. 56-59 (in Russian).
2. Vazhenin A.V., Rykovanov G.N., Mokichev G.V., Kandakova E.U., Munasipov Z.Z., Stepanova A.I., Astafjev D.N. Remove Results of Combined Photon-Neutron Therapy of Malignant Tumors of the Head and Neck in the Ural Center of Neutron Therapy. *Sibirskiy Onkologicheskij Zhurnal*. 2007, v. 24, no. 4, pp. 44-49 (in Russian).
3. Bobkova G.G., Vazhenin A.V., Lukina E.U., Vazhenin I.A., Munacipov Z.Z. Evaluation of Effectiveness of Combined Photon-Neutron Therapy in the Palliative Treatment of Metastatic Brain Tumors. *Palliativnaya Meditsina i Reabilitatsiya*, 2012, no 3, pp. 36-39 (in Russian).
4. Kandakova E.U. *Clinical and Experimental Substantiation of Increasing the Efficiency of Combined Photon-Neutron Therapy of Head and Neck Tumors*. Doct. diss. Moscow. FGBU

- «RNTsRR» Minzdrava Rossii Publ., 2015. 197 p. (in Russian).
5. Musabaeva L.I., Choynzonov E.L., Gribova O.V., Startseva Zh.A., Velikaya V.V., Lisin V.A. Neutron Therapy in the Treatment of Radioresistant Malignant Tumors. *Sibirskiy Onkologicheskii Zhurnal*. 2016, v. 15, no 3, pp. 67-71; DOI: <https://doi.org/10.21294/1814-4861-2016-15-3-67-71> (in Russian).
 6. Gulidov I.A., Mardynskij Yu.S. Hadrons in Radiotherapy of Head and Neck Tumors. *Sibirskiy Onkologicheskii Zhurnal*. 2006, no. S1, pp. 37 (in Russian).
 7. Tsyb A.F., Uliyanenko S.E., Mardynskij Yu.S., Sokolov V.A., Potetnya V.I., Tsyb T.S., Kapchigashev S.P., Gulidov I.A., Sysoev A.S. *Neutrons in the Treatment of Cancer*. Obninsk. BIST Publ., 2003, 112 p. (in Russian).
 8. Gulidov I.A., Mardynskij Yu.S., Smirnova I.A., Sysoev A.S., Aminov G.G. Combined Photon-Neutron Therapy in Complex Treatment of Patients with Breast Cancer of Stage IIMV. *Sibirskiy Onkologicheskii Zhurnal*. 2004, v. 10-11, no. 2-3, pp. 66-69 (in Russian).
 9. Koryakina E.V. *Cytogenetic Effects of Ultra-High Dose Rate Radiation*. Saarbrücken: LAP Lambert Academic Publishing, 2014. 168 p. (in Russian).
 10. Symonds P., Jones G.D.D. FLASH Radiotherapy: The Next Technological Advance in Radiation Therapy. *Clinical Oncology*. 2019, v. 31, no 7, pp. 405-406; DOI: <https://doi.org/10.1016/j.clon.2019.05.011>.
 11. Jin J.-Y., Gu A., Wang W., Oleinick N.L., Machtay M., Kong F.-M. Ultra-High Dose Rate Effect on Circulating Immune Cells: A Potential Mechanism for FLASH Effect? *Radiotherapy and Oncology*. 2020, v. 149, pp. 55-62; DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radonc.2020.04.054>.
 12. Marlen P., Dahele M., Folkerts M., Abel E., Slotman B.J., Verbakel W. Bridging FLASH to the Clinic: Treatment Planning Considerations for Ultrahigh Dose-rate Proton Beams. *International Journal of Radiation Oncology, Biology, Physics*. 2020, v. 106, no 3, pp. 621-629; DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ijrobp.2019.11.011>.
 13. Pikaev A.K. *Dosimetry in Radiation Chemistry*. Moscow. Nauka Publ., 1975, 312 p. (in Russian).
 14. Sokolova I.K. *Chemical Dosimetry Methods in Radiobiology*. Moscow. Atomizdat Publ., 1972, 120 p. (in Russian).
 15. Pikaev A.K., Glazunov P.YA., Spicyn V.I. The Mechanism of Radiolytic Oxidation of Ferrous (II) Iron in Aqueous Sulfuric Acid Solutions Containing Oxygen at High Absorbed Dose Rates. *Doklady Akademii Nauk SSSR*. 1963, v. 150, no. 5, pp. 1077-1080 (in Russian).
 16. Klassen N.V., Shortt K.R., Seuntjens J., Ross C.K. Fricke dosimetry: the difference between $G(\text{Fe}^{3+})$ for ^{60}Co γ -rays and high-energy x-rays. *Physics in Medicine & Biology*. 1999, v. 44, pp. 1609-1624; DOI: <https://doi.org/10.1088/0031-9155/44/7/303>
 17. Prohorov Yu.A., Kononov V.N., Kuvshinchikov M.A., Fokin G.N., Yakubov P.A., Obaturov G.M., Sokolov V.A. Dosimetry on Reactor BARS-6. *Atomnaya Energiya*. 1998; v. 85, iss. 5, pp. 391-393; DOI: <https://doi.org/10.1007/BF02361103> (in Russian).
 18. Bochvar I.A., Viktorov D.V., Tkachenko V.V., Trofimov V.M. Application of the Thermoluminescent Glass IKS Dosimeters for the Determination of g-radiation Doses in g-neutron Fields. *Radiobiologiya*. 1972, v. 12, no 6, pp. 938-941 (in Russian).
 19. Kapchigashev S.P., Potetnya V.I., Potetnya O.I. Application of ferrosulphate solution in dosimetric research on reactor beams. *Atomnaya Energiya*. 1984; v. 56, iss. 4, pp. 283-285; DOI: <https://doi.org/10.1007/BF01124201>.
 20. Lawson R.C., Porter D. The Response of the Ferrous Sulphate Dosimeter to Neutrons. *Physics in Medicine & Biology*, 1975; v. 20, no 3, pp. 420-430; DOI: <https://doi.org/10.1088/0031-9155/20/3/006>.
 21. Kurachenko Yu.A., Matusevich E.S., Prokhorov Yu.A., Fokin G.N., Yakubov P.A. Experiment Calculated Activation Rate of Nickel Foils in the Reactor Hall of the BARS-6 Pulsed Reactor. *Izvestia Vysshikh Uchebnykh Zawedeniy. Yadernaya Energetika*. 2008, no. 3, pp. 57-64 (in Russian).

22. Greene D., Law J., Major D. The G-value for the ferrous Sulphate Dosimeter for the Radiation from Californium-252. *Physics in Medicine & Biology*, 1973, v. 18, no 6, pp. 800-807; DOI: <https://doi.org/10.1088/0031-9155/18/6/302>.

23. Autsavapromporn N., Meesungnoen J., Plante I., Jay-Gerin J.P. Monte Carlo Simulation Study of the Effects of Acidity and LET on the Primary Free-Radical and Molecular Yields of Water Radiolysis – Application to the Fricke Dosimeter. *Canadian Journal of Chemistry*, 2007, v. 85, iss. 3, pp. 214-229; DOI: <https://doi.org/10.1139/v07-021>.

Authors

Potetnya Vladimir Ivanovich, Senior Researcher, Cand. Sci. (Biol.)

E-mail: potetnya@yandex.ru

Koryakina Ekaterina Vladimirovna, Senior Researcher, Cand. Sci. (Biol.)

E-mail: ek-koryakina@mrrc.obninsk.ru

Troshina Marina Vyacheslavovna, Researcher

E-mail: troshina-m-v@mrrc.obninsk.ru

Koryakin Sergey Nikolaevich, Head of Lab, Cand. Sci. (Biol.)

E-mail: korsernic@mail.ru