

Измерение дозы облучения

Международная система по надежному измерению дозы в радиационной технологии

К.Х. Чэдвик*

Применение ионизирующего излучения, с помощью которого решается ряд технологических проблем, возрастает со скоростью приблизительно 15% в год [1]. Области применения простираются от сохранения продовольствия до радиационной полимеризации пластмасс; применение излучения одинаково важно как для развитых, так и для развивающихся стран.

С помощью радиационного облучения можно:

предохранять лук и картофель от прорастания; дезинфицировать от насекомых хлебные злаки, горох, бобы, чечевицу и сушеные продукты;

уничтожать порчу и болезнетворные микроорганизмы в продовольствии, например, сальмонеллу в курах;

увеличить срок сохранности свежей рыбы, фруктов и овощей;

стерилизовать широкий набор медицинских изделий;

пастеризовать или стерилизовать упаковочные материалы для продуктов питания;

сохранять пластиковые покрытия и краски;

полимеризовать изоляционные материалы из пластмассы;

вызывать термическую усадку пластмасс;

увеличивать прочность резины для покрышек колес;

обеззараживать сточные воды

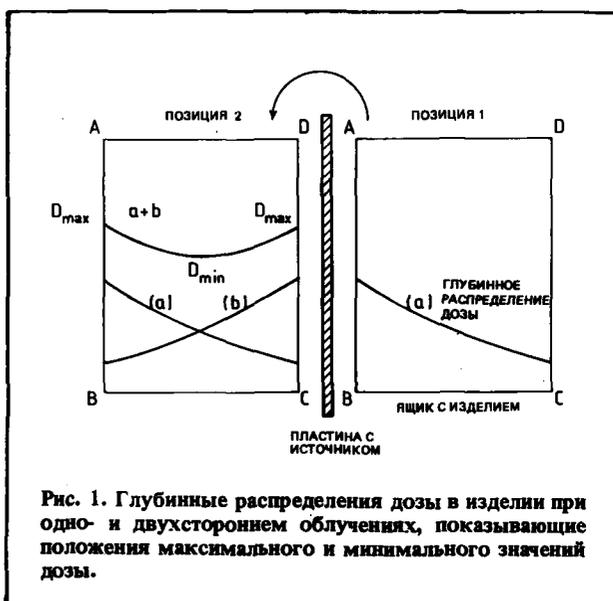
и так далее (этот перечень далеко не полный).

Интенсивно проникающие гамма- и рентгеновское излучения используются для обработки основной массы продуктов, а менее проникающие интенсивные пучки электронов используются для обработки поверхности или верхних слоев изделий. Дозы облучения лежат в диапазоне от 10 Гр (1 крад) до 100 кГр (10 Мрад). Правильное использование излучения для сохранения продовольствия и стерилизации медицинских изделий прямо влияет на здоровье людей; при обработке пластмасс и других материалов увеличивается прочность облученного материала. Прежние исследования и разработки устанавливали связь между эффективностью каждого радиационного процесса и дозой облучения, так что в большинстве случаев оператор может использовать при подготовке и в процессе облучения результаты дозиметрических измерений для контроля качества облучения, чтобы

гарантировать сохранность или прочность облученных продуктов [2, 3].

Путь от исследований к применению облучения в больших масштабах — это путь от лабораторных облучений небольших образцов при тщательном контроле условий, когда доза облучения однородна по всему образцу, к облучению изделий больших размеров в промышленных масштабах, когда невозможно обеспечить условия, чтобы все части изделия получили одну и ту же дозу. В этом случае необходимо допускать наличие распределения дозы по изделию и иметь возможность измерить распределение дозы, чтобы гарантировать, что оно не выходит за предписанные границы.

Проектируются многочисленные промышленные облучательные установки, обеспечивающие, по возможности, однородное распределение дозы по изделию. В гамма-установках контейнеры с изделиями движутся мимо плоского источника излучения. Поэтому поверхность контейнера облучается равномерно, так что доза изменяется только по глубине изделия. Обычно контейнеры облучаются с двух сторон, чтобы улучшить однородность дозы по глубине, но так как невозможно получить совершенно равномерное распределение дозы по всему образцу, то всегда имеются области с максимальной дозой — на поверхности контейнера и области с минимальной дозой — в средней части контейнера. Например, в гамма-установках для облучения продуктов питания в Вагенингене (Нидер-



* Г-н Чэдвик из Отдела биологии Европейской комиссии, откомандированный в Группу радиационной биофизики при Ассоциации Евромтом-Италия, Постбус 48, 6700АА Вагенинген, Нидерланды.



Рис. 2. Схематическая диаграмма, показывающая прохождение контейнера с изделием под сканирующим пучком электронов при одностороннем облучении.

ланды) контейнеры входят в камеры облучения через лабиринт и дважды проходят мимо плоского источника, при этом они ориентированы то одной, то другой своей стороной к источнику, что обеспечивает двухстороннее облучение. Скорость перемещения контейнера мимо плоского источника определяет значение дозы, необходимое для данного изделия: чем выше скорость, тем ниже значение дозы. На рис. 1 приведено распределение дозы при одностороннем и двухстороннем облучениях и показаны

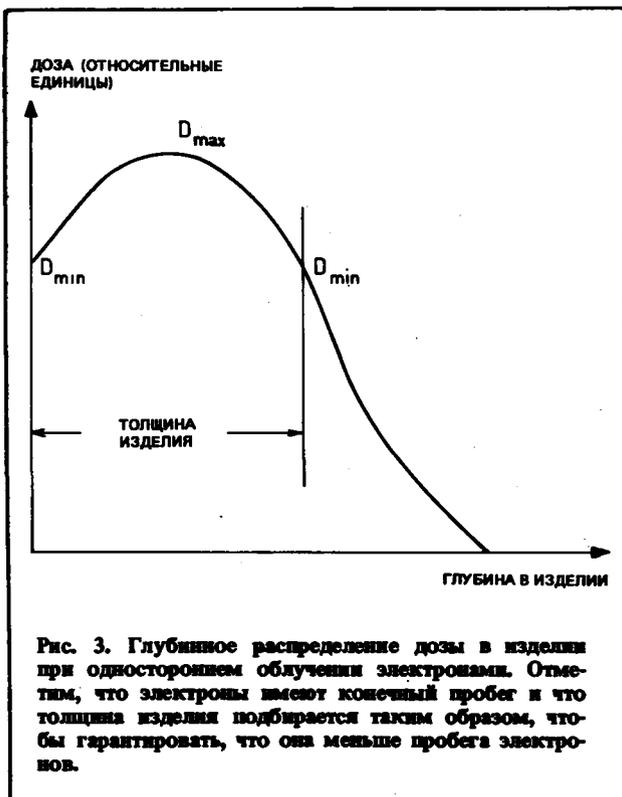


Рис. 3. Глубинное распределение дозы в изделии при одностороннем облучении электронами. Отметим, что электроны имеют конечный пробег и что толщина изделия подбирается таким образом, чтобы гарантировать, что она меньше пробега электронов.

области с максимальными и минимальными значениями дозы [3].

В облучательных установках с электронными пучками изделие проходит в одном направлении поперек пучка, который быстро сканируется перпендикулярно, чтобы обеспечить равномерную поверхностную дозу на изделии. Распределение дозы меняется с глубиной в изделии и обычно носит более сложный характер по сравнению с гамма-облучением. На рис. 2 показано прохождение изделия через сканирующий пучок электронов, а на рис. 3 представлено распределение дозы по глубине изделия.

Проблемы дозиметрии в процессе облучения

Проблемы, которые могут встретиться при обычном контроле в промышленном процессе облучения, обусловлены разнообразием условий в многочисленных установках, существенно отличающихся от тех условий, в которых проводится калибровка дозиметрических систем. Эти различия могут привести к неожиданным систематическим ошибкам при определении дозы.

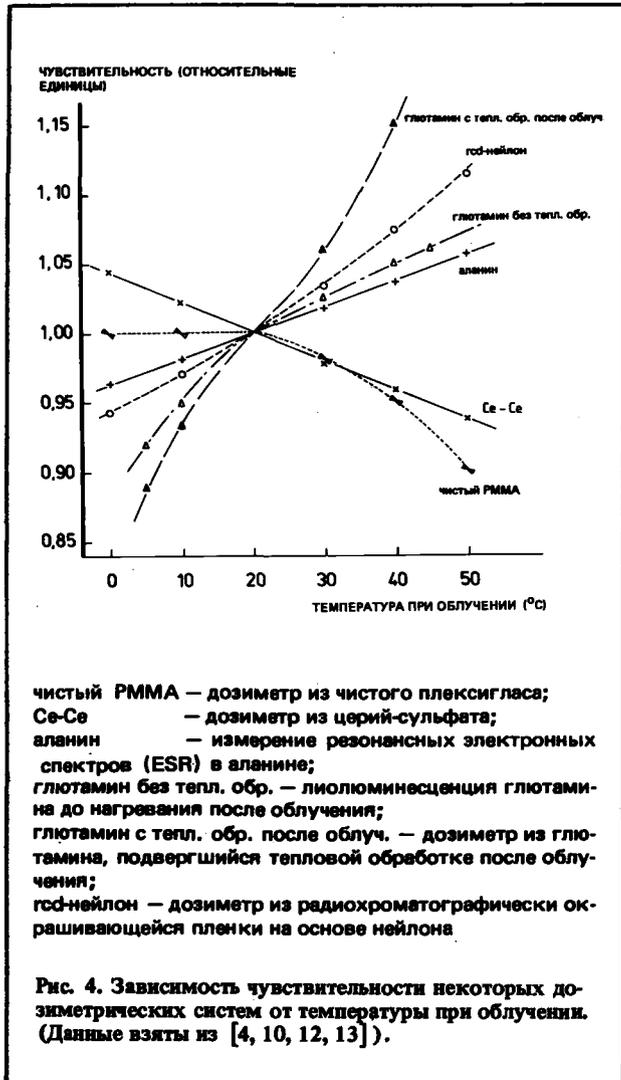
В гамма-установках дозиметрические системы обычно калибруются при фиксированной стандартизованной мощности дозы, при постоянной температуре в течение менее четырех часов. В больших гамма-установках облучение проводится при изменяющихся в широких пределах мощностях дозы, в течение многих часов, если не дней, и в условиях, когда возрастание температуры на 20°C не является обычным. В установках с электронными пучками доза обеспечивается облучением с очень высокой мощностью дозы за несколько секунд.

Многие материалы подвергаются заметным изменениям при облучении в больших дозах (порядка нескольких килорей) и поэтому могут использоваться для дозиметрии. Однако, многие изменения, обусловленные воздействием излучения, неудобно или трудно измерять, или они недостаточно стабильны, чтобы иметь возможность получать воспроизводимые значения дозы. Хотя более подходящие и более стабильные изменения могут измеряться, конечные результаты во всех дозиметрических системах для измерения больших доз являются итогом взаимодействия первичных эффектов, вызванных облучением, химических реакций, нестабильных процессов. Интенсивность, с которой образуются первичные эффекты, и скорости, с которыми нестабильные образования взаимодействуют друг с другом, в большей степени зависят от окружающих дозиметр условий — температуры, влажности, присутствия кислорода и т. д. Следовательно, различия между условиями при калибровке и рабочими условиями могут вызвать систематические отклонения в чувствительности дозиметра и привести к незаметным, неожиданным ошибкам при измерении дозы.

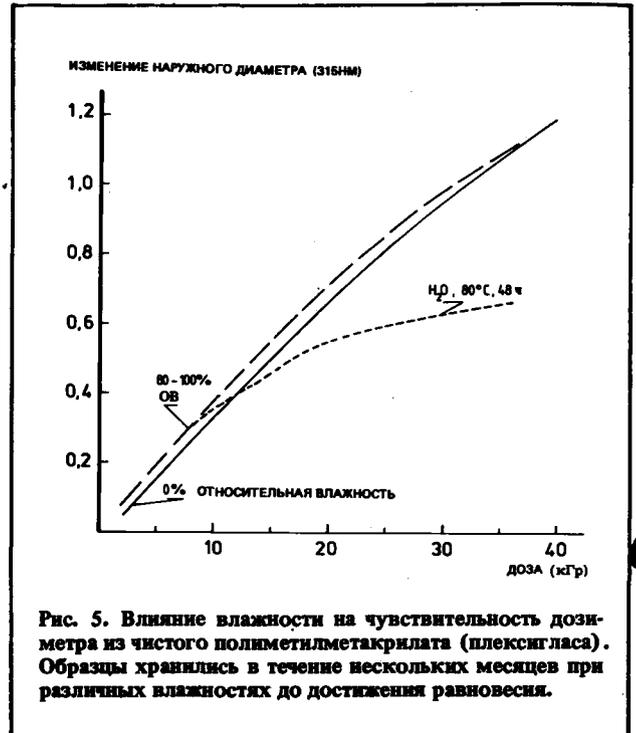
Один из факторов, который влияет на чувствительность многих дозиметрических систем для измерения больших доз, является температура во время облучения: на рис. 4 показано, как чувствительность от-

Измерение дозы облучения

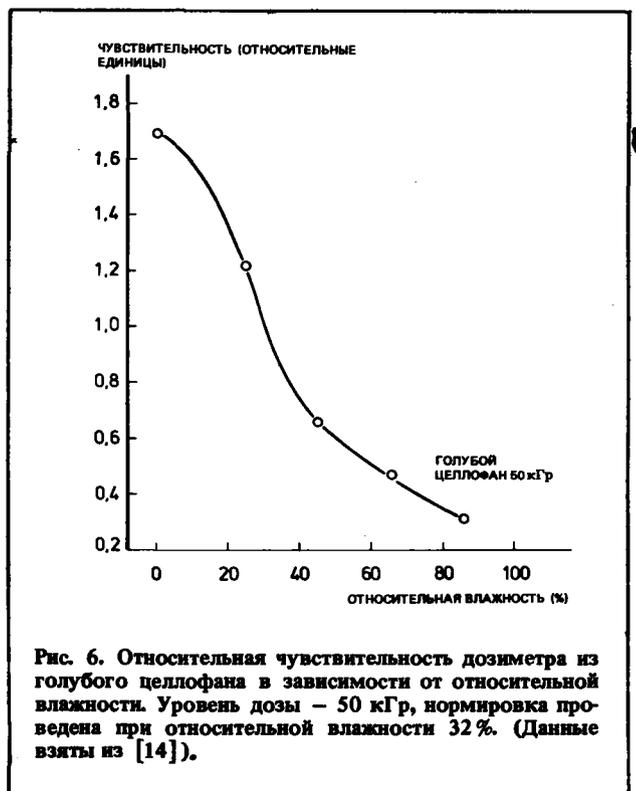
дельных различных дозиметрических систем зависит от температуры. Другим фактором является влажность во время облучения: на рис. 5 показано изменение чувствительности дозиметра из чистого плексигласа после хранения до облучения в течение нескольких месяцев при относительной влажности 0% и от 80 до 100%. Как видно из рисунка, заметен эффект 48-часовой обработки в воде при 80 °С до облучения. На рис. 6 представлена зависимость чувствительности дозиметра из голубого целлофана от относительной влажности при дозе 50 кГр.



Эти примеры показывают, что при обычном использовании дозиметрии в промышленных установках могут быть допущены ошибки из-за различных условий при проведении калибровки и обычной работе. Такие неожиданные ошибки могут отразиться на прочности облучаемого изделия. Более важным, однако, является то обстоятельство, что тщательная дозиметрия позволяет обеспечивать уникальный контроль за качеством радиационного процесса и является основой для обязательной приемки продуктов, которые могут влиять на здоровье людей. Считается, что медицинское изделие стерилизовано, если только



одна миллионная доля его несет жизнеспособную спору бактерии. На практике невозможно проводить микробиологические исследования стерилизованных продуктов, чтобы убедиться, удовлетворяют ли они этому требованию. При сохранении продуктов питания также невозможно обнаружить эффект воздей-



УСРЕДНЕННОЕ ОТНОШЕНИЕ

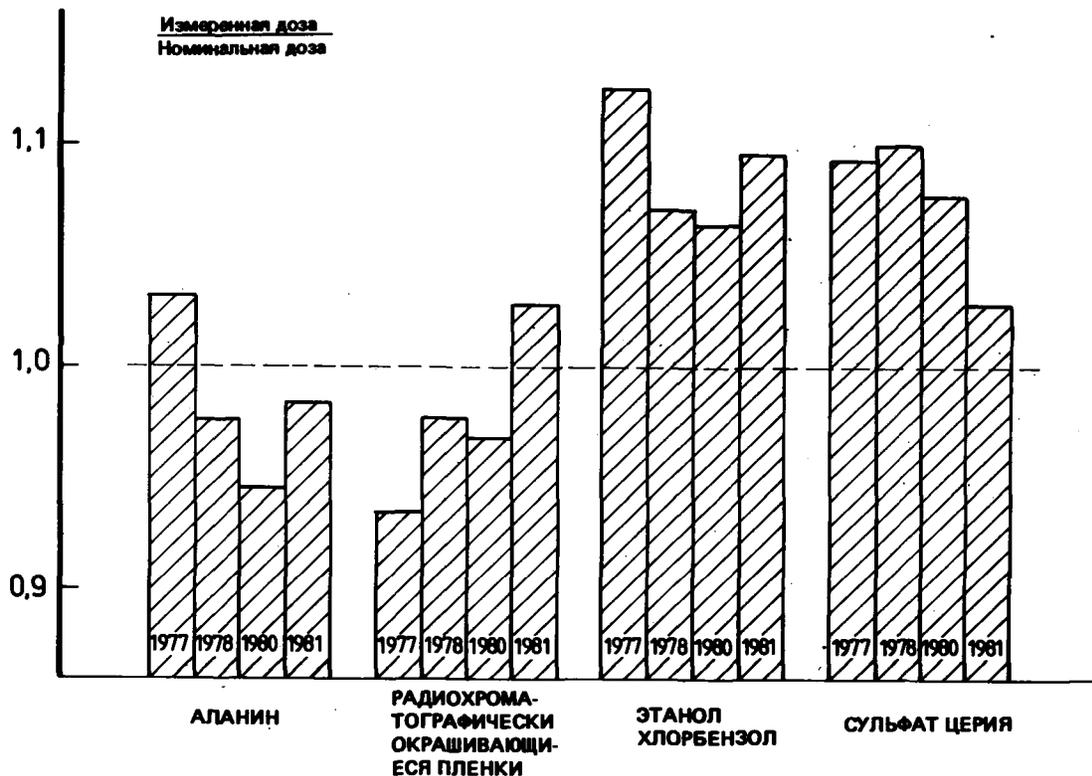


Рис. 7. Усредненное отношение измеренной дозы к номинальному значению, определенное при взаимном сравнении для четырех значений дозы (средних и больших) с помощью четырех использованных дозиметрических систем.

(Данные 1977 г. исключают перекрещивающиеся измерения, проведенные дозиметрическими лабораториями).

вия облучения: к моменту времени, когда проводится тестирование, продукты долее не сохраняются. Следовательно, контроль за качеством процессов облучения должен основываться на уверенности, что продукт был облучен с точным значением дозы, а это требует, чтобы доза внутри продукта была тщательно измерена.

Международное взаимное сравнение

С увеличением международной торговли продуктами, подвергшимися облучению, власти, которые отвечают за безопасность использования таких продуктов, будут требовать совершенно конкретных доказательств того, что продукт подвергался воздействию совершенно определенной дозы и что результаты измерений соответствуют действительности. Учитывая это обстоятельство, МАГАТЭ приняло в 1977 г. программу проведения независимого международного взаимного сравнения дозиметрических систем для измерения больших доз в промышленных радиационных процессах. Конечной целью Агентства является

создание международной службы по надежному измерению дозы.

Программа Агентства по взаимному сравнению предусматривает разработку ряда дозиметрических систем, которые могут использоваться внутри продукта во время облучения параллельно с обычно применяемой на установке дозиметрической системой. Целью является получение уверенности, что при применении обычных дозиметрических систем не появляются неожиданные ошибки.

Следует подчеркнуть, что хотя не существует стандарта для дозиметрии в области доз в несколько кГр, эта программа не имеет в виду создание такого стандарта, а скорее дает надежду, что стандарт будет установлен под эгидой Международной палаты мер и весов. Дозиметрические системы Агентства для взаимного сравнения затем будут калиброваться по этим стандартам. Программа не будет обеспечивать службу калибровки дозиметров для операторов облучательных установок, а только имеет в виду разработку одной или двух систем для универсального использования операторами.

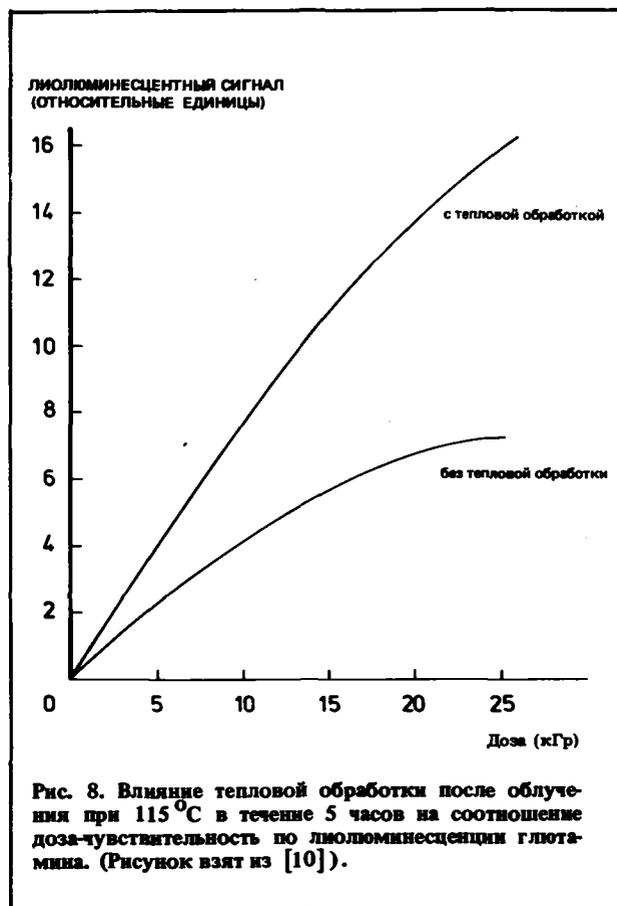
Выбор соответствующих дозиметров

С начала взаимного сравнения было решено сконцентрировать усилия на разработке дозиметрических систем, используемых в гамма-установках и в рентгеновских установках; работа по системам для электронных пучков началась только в этом году.

Поскольку дозиметры посылаются в различные страны мира и возвращаются обратно по почте, они должны обладать хорошей стабильностью до облучения и очень стабильной чувствительностью к дозе: это означает, что некоторые весьма подходящие для обычной работы дозиметрические системы не пригодны для взаимного сравнения. До сих пор были проверены четыре подходящие системы — измерения электрон-спиновых резонансов (ESR) в аланине [4]; радиохроматографически окрашивающиеся пленки [5]; сульфатные растворы церия [6] и этанол хлорбензол [7]. Первоначально предварительное взаимное сравнение (1977 г.) и всестороннее взаимное сравнение (1978 г.) [8] выполнялись на уровне лаборатории, а в 1980 г. опытные исследования были предприняты на уровне предприятия или на уровне изделия. Все эти исследования были специально запланированы таким образом, чтобы учесть разнообразные климатические условия. Пятая система, люлюминесценция глутамина [9, 10], была включена в более поздние исследования, потому что она была лишь недавно разработана для практического использования, а также потому, что она хорошо себя зарекомендовала при измерениях доз в диапазоне от 0,01 до 3 кГр (от 1 до 300 крад).

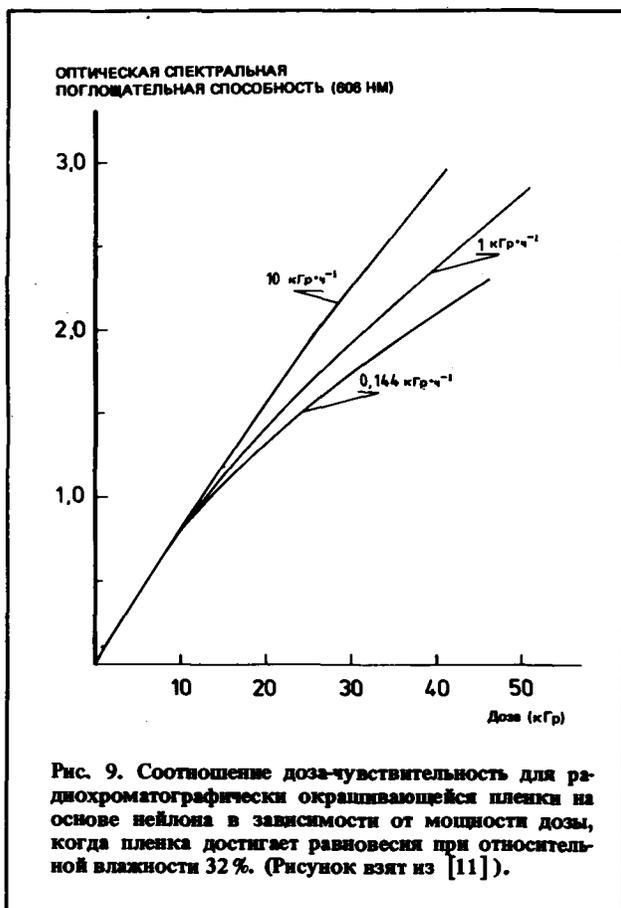
В 1981 г. были начаты исследования для решения вопроса об устойчивом различии результатов, получаемых с помощью дозиметров из аланина и радиохроматографически окрашивающихся пленок, сульфатных растворов и этанола хлорбензола. При взаимных сравнениях и опытных исследованиях эти четыре типа дозиметров подтвердили свою надежность и, с некоторыми оговорками, все четыре дозиметра остаются кандидатами для использования при взаимном сравнении. Однако, когда проводилось сравнение значений доз, полученных в лабораториях или на производстве, то значения доз, измеренных с помощью аланина и радиохроматографически окрашивающихся пленок, были постоянно на 3–5% ниже, а значения доз, измеренных с помощью сульфата церия и этанола хлорбензола, на 6–10% выше (рис. 7).

В 1981 г. были выполнены разнообразные исследования четырех факторов, наиболее вероятно влияющих на чувствительность дозиметров. Этими факторами были: доза, мощность дозы, температура при облучении и температура хранения. Они не были указаны дозиметрическим лабораториям, к которым обратились с просьбой провести первоначальные оценки дозы при нормальных условиях. Детальная информация об этих факторах была сообщена последовательно лабораториям, которые предусмотрели введение соответствующих поправок в свои первоначальные оценки доз. Таким образом, можно было надеяться, что причина различия в значениях доз будет выявлена в результате введения одной или более поправок.



К сожалению, этого не произошло. Однако исследования обнаружили наличие долговременной нестабильности от температуры и влажности в радиохроматографически окрашивающихся пленках, как и предполагали ранее на основании одного или двух результатов при взаимном сравнении. Также обнаружено, что требуется большое количество исследований стабильности при больших дозах глутамин-люлюминесцентной системы, и показано, что значения, полученные с помощью аланина и сульфата церия, постоянно согласуются друг с другом, а дозиметры из этанола хлорбензола постоянно завышают дозы на 10%.

При предварительном взаимном сравнении три дозиметрические системы функционировали надежно в диапазоне доз от 0,01 до 3 кГр (от 1 до 300 крад), но три другие системы имели серьезные недостатки. Вследствие этого не проведено всестороннего взаимного сравнения результатов, полученных с помощью существующих систем (измерение электрон-спиновых резонансов (ESR) аланина, толстые радиохроматографически окрашивающиеся пленки и люлюминесценция глутамина), и эти системы использовались в 1981 г. при опытных исследованиях на уровне производства и на уровне изделия. В этих опытных исследованиях дозиметры из аланина снова показали свою стабильность, а дозиметры из глутамина зарекомендовали себя хорошо — хотя характеристики глутамина на одном из предприятий не вполне соответствовали общепринятым. Была снова обнаружена долго-



временная нестабильность от температуры и влажности в толстых радиохроматографически окрашивающихся пленках.

Согласованная программа исследований

Параллельно с программой взаимного сравнения Агентство учредило согласованную программу исследований, содержание которой концентрируется на специфических проблемах:

- влияние параметров окружающей среды, температуры, влажности и т. д. на стабильность и точность дозиметрических систем для измерения больших доз
- разработка более новых дозиметрических систем для использования в службах взаимного сравнения;
- разработка дозиметрических систем для измерений интенсивных электронных пучков.

Основная цель программы исследований — объединение банков данных для взаимного сравнения дозиметрических систем. Были обнаружены отдельные неожиданные результаты и программа стимулировала разработку дозиметрических систем на основе лиолюминесценции. Результаты будут не только влиять на взаимное сравнение дозиметрических систем, но приведут к усовершенствованиям при использовании обычных дозиметров.

Заметным итогом осуществления согласованной программы исследований явилась разработка методики нагревания дозиметров из глутамина после облуче-

ния перед считыванием результатов. Это приводит к снижению влияния температуры хранения после облучения на чувствительность дозиметра [10]. Было отмечено, что хранение глутамина в течение длительного периода времени после облучения не приводит к затуханию лиолюминесцентного сигнала, но величина сигнала зависит от температуры и влажности при хранении. Тепловая обработка при 115 °С в течение пяти часов существенно увеличивает чувствительность дозиметра и в то же время почти полностью исключает влияние любых условий хранения после облучения. На рис. 8 показано относительное возрастание лиолюминесцентного сигнала в результате тепловой обработки. К сожалению, тепловая обработка, увеличивая чувствительность дозиметра, также увеличивает чувствительность дозиметра к температуре при облучении, как это видно из рис. 4.

Исследования по программе также показали, что хотя радиохроматографически окрашивающиеся пленки имеют исключительную стабильность при очень высоких мощностях дозы в установках с электронными пучками, при более низких мощностях дозы гамма-лучевых установок обнаружена зависимость чувствительности от мощности дозы. Однако, это имеет место только тогда, когда пленка находилась при некоторых определенных значениях относительной влажности (рис. 9). Исследования также показали, что конечная окраска такой дозиметрической пленки была довольно сложной. В очень сухой пленке были обнаружены различные цветообразующие виды: все было стабильно, пока пленки облучались во влажном воздухе, в результате чего они превращались в пленку нормального вида. Эти исследования, в которых условия хранения дозиметров между облучением и считыванием результатов оставались неизменными, приводили к существенному улучшению конечных характеристик [11].

Другие исследования показали, что хотя чувствительность дозиметра из аланина не зависит от воздействия дневного света во время процедуры считывания результатов, хранение на свету в течение четырех недель вызывает 20 %-ную потерю сигнала, а при воздействии в течение четырех недель ультрафиолетового излучения теряется три четверти сигнала. Интересной особенностью является то, что потеря 75 % сигнала, определенная путем измерения расстояния между пиками в резонансных электрон-спиновых спектрах свободных радикалов, сопровождается весьма заметным изменением формы спектра. Интегрирование резонансных электрон-спиновых спектров для определения полного количества свободных радикалов показало, что ультрафиолетовое облучение приводит к затуханию сигнала только на 30 %, так как ультрафиолетовое облучение должно превращать большую часть первично образованных радикалов во вторичные.

Следовательно, даже в этой дозиметрической системе, которая работала очень надежно при взаимном сравнении дозиметров, эффект, обусловленный облучением, не совсем устойчив и с системой необходимо обращаться аккуратно, чтобы получать оптимальные результаты.

Международная служба по надежному измерению дозы

В результате серии взаимных сравнений дозиметров стало очевидным, что пока несколько дозиметрических систем работает хорошо при экстремальных необходимых условиях, дозиметр из аланина работает стабильно и может охватить диапазон доз от 10 Гр до 100 кГр. Поэтому Агентство рекомендовало службе по надежному измерению дозы начать работу с этими дозиметрами на гамма-лучевых установках в диапазоне доз от 10 Гр до 100 кГр, используя измерения электрон-спиновых резонансов свободных радикалов, образованных в аланине. Сначала опытная служба будет действовать для оценки включенных в сферу действия организационных проблем, таких как служба, и для оценки поведения дозиметрических систем на практике.

С тем чтобы служба могла завоевать репутацию совершенно независимой, беспристрастной международной службы, Агентство будет координировать распределение и возвращение дозиметров и детально сопоставлять все данные. Конфиденциальность будет сохраняться для операторов лучевых установок путем использования закодированных дозиметров, и операторы будут иметь возможность сравнивать свои оценки дозы со значениями, полученными в Агентстве. Предполагалось, что должен вводиться „предел исследования”, когда обнаруживается различие между значениями доз, полученными оператором и Агентством, превышающее 10%. Различие в 10% подразумевало бы систематическое расхождение результатов в двух измерительных системах, и это требовало бы дальнейшего излучения. В таком случае Агентство могло бы повторить измерения на установке, используя применявшуюся ранее систему совместно с обычно используемой системой. Если результаты подтвердят, что обычно применяемая на облучательной установке оператором система действует не должным образом, то Агентство может попробовать с помощью эксперта обнаружить причины ошибок при дозиметрии.

Служба уже начала работу, следующим шагом должна быть разработка через серию экспериментов по взаимному сравнению дозиметрических систем, пригодных для измерений электронных пучков. Вероятно, это окажется технически более сложной задачей, чем измерения на гамма- и рентгеновских установках, но проведенное облучение по программе должно помочь развитию службы взаимного сравнения результатов дозиметрии электронных пучков.

В конечном счете международная независимая Служба Агентства по надежному измерению дозы может создать ситуацию, когда власти, ответственные за здравоохранение, или власти, ответственные за регламентирование, могут санкционировать использование облученных продуктов, от которых зависит здоровье людей, только тогда, когда они сопровождаются документами, свидетельствующими о том, что контроль качества дозиметрии гарантируется Службой Агентства. Некоторые могут ду-

мать, что это не является необходимым, и выражают сомнение в надежности своих собственных возможностей проведения дозиметрии, но я не уверен, что это правильная позиция. Я знаю, что много операторов лучевых установок в состоянии проводить тщательную дозиметрию, но я также знаю, что очень легко совершить значительные систематические ошибки совершенно бессознательно. Я убежден, что независимая служба по надежному измерению дозы может только улучшить доверие к торговле подвергшимся облучению товарами и, следовательно, будет полезна как потребителю, так и отраслям, связанным с использованием излучений в промышленных масштабах.

References

- [1] J. Silverman *Current status of radiation processing* Radiation Physics and Chemistry 14, 17–21 (1979).
- [2] K.H. Chadwick *Radiation measurements and quality control* Radiation Physics and Chemistry 14, 203–212 (1979).
- [3] *Manual of food irradiation dosimetry* IAEA Tech. Rep. 178, Vienna (1977).
- [4] D.F. Regulla and U. Deffner *Standardization in high-level photon dosimetry based on ESR transfer metrology* In: Biomedical dosimetry: physical aspects, instrumentation, calibration 391–404, IAEA, Vienna (1981).
- [5] W.L. McLaughlin, A. Miller, S. Fidau, K. Pejtersen and W. Batsberg *Radiochromic plastic film for accurate measurement of radiation absorbed dose and dose distributions* Radiation Physics and Chemistry 10, 119–127 (1977).
- [6] R.W. Matthews *Potentiometric estimation of megared dose with the ceric-cerous system* Int. J. Appl. Radiat. Isot. 23, 179–185 (1972).
- [7] G. Foldiák, Z. Horváth and V. Stenger *Routine dosimetry for high-activity gamma-irradiation facilities* In: Dosimetry in agriculture, industry, biology and medicine 367–381, IAEA, Vienna (1973).
- [8] *High-dose measurements in industrial radiation processing* Tech. Rep. 205 IAEA, Vienna (1977).
- [9] K.V. Ettinger, J.R. Mallard, S. Srirath and A. Takavar *Development of lyoluminescence dosimetry system for radiation processing of food* In: Food preservation by irradiation 345–359, IAEA, Vienna (1978).
- [10] K.J. Puite *A lyoluminescence dosimetry system useful for high-dose intercomparison studies* Nucl. Inst. Meth. 175, 122–125 (1980).
- [11] P. Gehringer, H. Eschweiler and E. Proksch *Dose-rate and humidity effects on the γ -radiation response of nylon-based radiochromic film dosimeters* Int. J. Appl. Radiat. Isot. 31, 595–606 (1980).
- [12] A. Miller and W.L. McLaughlin *Evaluation of radiochromic-dye films and other plastic dose meters under radiation processing conditions* In: High-dose measurements in industrial radiation processing 119–138, IAEA, Vienna (1981).
- [13] R.D.H. Chu and M.T. Antoniadou *Use of ceric sulphate and perspex dosimeters for the calibration of irradiation facilities* In: Radiosterilization of medical products 83–99, IAEA, Vienna (1975).
- [14] P. Gehringer, E. Proksch and H. Eschweiler *The γ -radiation response of blue cellophane films under controlled humidity conditions* Int. J. Appl. Radiat. Isot. 33, 27–32 (1982).