

CANADA

Department of Energy, Mines and Resources : Ministère de l'Énergie, des Mines et des Ressources

Mines Branch : Direction des Mines

Mining Research Centre : Centre des Recherches Minières

DIVISIONAL REPORT MRL 75-4 (TR) RAPPORT DIVISIONNAIRE

Track Etch Detector Method for Measurement of Radon 222
Concentration in Air

by

M. Biernacka, K. Mamont-Ciesla, and A. Wasilewski

Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej
Raport nr Clor - 97/D Warsaw

Translated from Polish into English by the Multilingual
Services Division, Translation Bureau, Department of the
Secretary of State

"This document is an unedited, interim report prepared primarily for internal reference and does not represent a final expression of the opinion of Mines Branch. When this report is supplied to interested groups externally, Mines Branch makes no representation as to its completeness, accuracy or usefulness."

"Ce document est un rapport inédit et intermédiaire préparé essentiellement pour servir de référence interne, et il ne représente pas l'expression finale de la pensée de la Direction des mines. Ce rapport peut être remis à des groupes intéressés de l'extérieur mais la Direction des mines n'assume aucune responsabilité pour ce qui est de son intégralité, de sa précision et de son utilité."

January 1975

MRL 75-4 (TR)

01-7988373



CLIENT'S NO. N ^o DU CLIENT	DEPARTMENT MINISTÈRE	DIVISION/BRANCH DIVISION/DIRECTION	CITY VILLE
	E.M. & R.	Mines Branch Library	Ottawa
BUREAU NO. N ^o DU BUREAU	LANGUAGE LANGUE	TRANSLATOR (INITIALS) TRADUCTEUR (INITIALES)	
282562	Polish	S.N.	JAN - 9 1973

Central Laboratory for radiological Protection **RECEIVED TRANSLATION**

Nuclear Energy Information Centre

Warsaw, Poland.

Rapport No CLOR 97/D, Warszawa 1973, 20 p.

For information only
TRANSLATION NON REVISEE
Information seulement

M. Biernacki, K. Mamont-Ciesla, A. Wasilewski

Track Etch Detector Method for Measurement
of Radon 222 Concentration in Air

STRESZCZENIE

W pracy przedstawiono możliwość wykorzystania detektorów śladowych z folii triacetanu celulozy Triafol TN do pomiarów stężenia ^{222}Rn w powietrzu. Omówiono cechy charakterystyczne tych detektorów, ich kalibrację przy pomocy generatora wzorcowych stężeń ^{222}Rn oraz wstępne pomiary wykonane metodą detekcji śladowej w kopalniach.

SUMMARY

The possibility of using cellulose triacetate detectors /Triafol TN/ for measurements of ^{222}Rn concentration in air, has been discussed. The features of these detectors and their calibration in the radon gas generator, have been described. The results of field testing in mines are presented.

РЕЗЮМЕ

Представлено возможность употребления следовых детекторов из фольги трехуксусной целлюлозы Триафоль TN для измерений концентрации ^{222}Rn в воздухе. Указано характеристические свойства этих детекторов и калибровку с помощью генератора с образцовой концентрацией ^{222}Rn , а также предварительные измерения проведены методом детекции следов в шахтах.

T.N. Throughout this paper, the Polish word "Ślad" has been translated into "Track", in preference to "Trace".



02059 / 74

1a

CENTRALNE LABORATORIUM OCHRONY RADIOLOGICZNEJ
CENTRAL LABORATORY FOR RADIOLOGICAL PROTECTION
Warsaw, Poland

Report nr CLOR - 97/D

WYKORZYSTANIE METODY DETEKЦИИ ŚLADOWEJ DO POMIARU
STĘŻENIA RADONU -222 W POWIETRZU

TRACK ETCH DETECTOR METHOD FOR MEASUREMENT
OF RADON -222 CONCENTRATION IN AIR

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ МЕТОДА ДЕТЕКЦИИ СЛЕДОВ ДЛЯ
ИЗМЕРЕНИЯ КОНЦЕНТРАЦИИ РАДОНА -222 В ВОЗДУХЕ

M. Biernacka
K. Mamont-Cieśla
A. Wasilewski

WARSZAWA
1973

This report has been reproduced directly from
the best available copy

Распространяет:

ИНФОРМАЦИОННЫЙ ЦЕНТР ПО ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГИИ
при Учреждении по Атомной Энергии
Дворец Культуры и Науки
Варшава, ПОЛЬША

Available from:

NUCLEAR ENERGY INFORMATION CENTER
ATOMIC ENERGY OFFICE
Palace of Culture and Science
Warsaw, POLAND

Drukuje i rozprowadza:

OŚRODEK INFORMACJI O ENERGII JĄDROWEJ
Urzędu Energii Atomowej
Warszawa, Pałac Kultury i Nauki

Wydaje Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej

Nakład 545 egz., Objętość ark. wyd. 1, Ark. druk. 1,25. Data
złożenia maszynopisu przez autora X. 1973 r., Oddano do druku
30.X.1973 r., Druk ukończono w grudniu 1973 r. SP-09/250/66,
Zam. 277/73

1. Introduction

A known method of registration of alpha particles by track etch detection on plastic foils provided a basis for adoption of such foils for measurements of ²²²Rn concentration in air (1). Because of their capacity to integrate the registered alpha particles, plastic foils were found useful also in the individual dosimeters, since they permit the estimation of the intake dose into the lungs of persons working in an atmosphere contaminated by ²²²Rn or by products of its decay (2). Since track dosimeters are non-sensitive to light as well as to X, gamma and beta radiation, the registration of alpha particles may be carried-out when there is an intense background of such radiation. The time stability of the latent, i.e. un-etched tracks consisting in a structurally changed foil material due to the ionization by alpha particles, is remarkably high, (up to several years for organic substances), and is practically independent from the ambient conditions such as humidity and temperatures up to temperatures approaching the softening point of the foil material that is approximately 150°C for foils of cellulose acetate.

There is no fading of latent tracks at room temperatures (3). (3)

The registration of alpha particles in foil material may take place only when energy losses dE in a material of thickness dx is sufficiently high. For each kind of foil material there is a well-defined critical value $\frac{dE}{dx}$ /min, below which no detection is possible. For cellulose acetate the detection threshold is 1.41 MeV mg⁻¹cm² (4). In case of alpha particles with energies above a certain critical value (approximately 3.8 MeV for foils of cellulose derivatives - Benton (5)), energy losses would be too small to cause ionisation, therefore, alpha particles emitted by ²²²Rn derivatives and deposited on

the detector's surface would not be registered. Thus, the registration of alpha particles will be possible only for particles the initial energy of which has been brought down below the critical value during the passage through air, i.e. for the particles originating from ^{222}Rn and its derivatives present in the atmosphere. The above mentioned characteristics render foil material particularly suitable for measurements of ^{222}Rn concentrations in the atmosphere.

Fig. 1 shows, enlarged several hundred times, a picture of alpha particle tracks, fixed by etching with a suitable chemical reagent. When fixed on a plastic foil, the tracks are in the form of cones with circular or elliptical bases. The composition, concentration and temperature of the reagent is chosen to suit the type of foil adopted. In the experiments (4) conducted in the Central Laboratory for Radiological Protection, the foil employed was Triafol TN (cellulose triacetate) 36.2 mg cm^{-2} thick, produced by Bayer. For etching of this foil a 28% KOK at a temperature of 60°C was employed.

2. Optimum etching time

In order to establish the optimum etching time for a given foil, two pieces measuring 15 by 40 mm of Triafol TN were exposed to radiation by alpha particles emanated by a ^{226}Ra source having a specific activity equal to $88.8 \text{ disintegr./min}^{-1} \text{ mm}^{-2}$. The periods of exposure were 5 and 7 min. long, respectively. Then the foils were etched in 28% KOH at a temperature of 60°C for periods of time ranging from 0.5 up to 19 hours. After each hour of etching the foils were washed, dried and the tracks were counted under a microscope at an enlargement of 1008 and field of vision of 0.029 mm^2 . The tracks were counted on 40 fields of vision, i.e. on a

total area of 1.16 mm^2 for each foil. Thus a relation was obtained between the density of tracks and the etching time. This relation is shown in Table 1. and in Fig. 2.

(5)

Table 1

t_{etch}	h	0,5	1	2	3	4	5	6	7	8	9
d_1	$\frac{\text{tracks}}{\text{mm}^2}$	0	0	338	510	630	790	710	640	480	430
d_2	$\frac{\text{tracks}}{\text{mm}^2}$	0	0	336	826	993	1100	980	850	660	600
t_{etch}	h	10	11	12	13	14	15	17	18	19	
d_1	$\frac{\text{tracks}}{\text{mm}^2}$	380	420	205	117	83	159	83	90	0	
d_2	$\frac{\text{tracks}}{\text{mm}^2}$	550	386	395	165	130	187	173	134	0	

where: d_1 - the number of tracks for $t_{\text{exp}} = 5 \text{ min.}$
 d_2 - the number of tracks for $t_{\text{exp}} = 7 \text{ min.}$

(6)

The shape of the curves $d=f/t_{\text{etch}}$ at $t_{\text{exp}} = \text{const.}$, indicates that there is only a small number of tracks over the initial etching period. For etching time extending for 2 or even 3 hours, the tracks are not sharply defined and their diameters are in the range of a few microns. The very small tracks may not even be visible under the microscope. With the increase of etching time the track diameter increases and small "holes" begin to appear. The maximum density of tracks on a square millimetre occurs for an etching time of 5 hours. Then the tracks are sharply defined and have diameters in the range of 10 u. Thus etching time of 5 hours has been chosen

as the optimum time for Triafol TN foils. For etching times above the optimum time, which depends to a large extent on the type of foil and etching conditions, diameters of larger tracks still increase, although the holes become less sharp. Because of the disappearance of small tracks, the density of all tracks decreases.

3. Relation between the density of tracks and the time of exposure to alpha radiation.

In order to establish the relation between the density of tracks (d /tracks/mm²) for Triafol TN foils and the time of exposure (t /min) to alpha radiation, the following experiments were carried out. In succession ten pieces of foil were irradiated by an open, surface type source of ²²⁶Ra, the times of exposure were 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, and 10 minutes for successive foils. After etching, the tracks were counted in the manner described in chapter 2. The relation obtained $d=f/t_{\text{exposure}}$ is shown in Table II and Fig. 3. (7)

Table II

texp	min	1	2	3	4	5	6
d'	tracks field of vision	5,4	8,6	13,2	19,8	17,6	23,2
d	tracks mm ²	186	296	455	680	610	800
texp	min	7	8	9	10		
d'	tracks field of vis.	28,2	31,2	33,4	37,8		
d	tracks mm ²	970	1075	1320	1300		

where: d' - the number of tracks in a field of vision of the microscope.

d - the number of tracks on a mm²

The relation obtained may be expressed as: $d=129.4t + 57.4$ with a correlation coefficient $R = 0.99$. (8)

4. Calibration of foils in a radon generator

In order to determine the relation between the density of tracks on a foil (in tracks/mm²) and the exposure to ²²²Rn radiation, expressed by the product of the concentration and the time of exposure, the foils were irradiated in a generator containing a standard concentration of ²²²Rn.

The radon generator operated on the principle of aeration of a solution of radon chloride having an activity 5 μ Ci, which with an air flow to wash out enough ²²²Rn to ensure concentrations in excess of those acceptable as an occupational hazard. A diagram of a ²²²Rn generator is shown in Fig. 4.

The generator operates as follows: compressed air from a bottle passes through a reducing valve to a primary filter of high efficiency in catching radioactive aerosols. The quantity of flow q , is measured by a flowmeter operating on the principle of measuring the pressure difference before and after an orifice with a fluid pressure gauge. The air, passing through a ²²⁶Ra solution, washes from the generator ²²²Rn and its derivatives. The ²²²Rn generator comprises an assembly of two glass bubblers each having a volume of 0.5 l. The first bubbler contains 100 ml. of distilled water in order to prevent too rapid an evaporation of water from the second bubbler which contains 100 ml. of ²²⁶Ra solution having an activity of 5 μ Ci. The ²²⁶Ra solution has been obtained from a dilution of an Amersham standard source having an activity of 100 μ Ci and a composition Ra/BaCl₂. The diluted solution comprised 0.1 n HCl containing 10 mg Ba/ml. The air flow q was of the order of 1 l/min to avoid spashing of the ²²⁶Ra solution. Any ²²²Rn derivatives, in form of radioactive aerosols washed out from the solution, were caught by a filter and therefore only the free gaseous radon passed to subsequent parts of the apparatus. The detectors were irradiated in a chamber having a capacity of 50 l, in which the detectors were freely suspended. (9)

Here are the designation symbols used in this paper:

- A_{Ra} - 226 Ra activity in solution (μCi)
 E_{Rn} - 222 Rn rate of emanation from a solution 226 Ra ($\mu\text{Ci min.}^{-1}$)
 λ - 222 Rn decay constant (min.^{-1})
 q - air flow rate ($\text{m}^3 \text{min.}^{-1}$)
 S - 222 Rn concentration in air after passage through the bubbler ($\mu\text{Ci m}^{-3}$)

since:

$$S = E_{Rn} / q, \text{ then } E_{Rn} = S \cdot q$$

and:

$$E_{Rn} = A_{Ra} \cdot \lambda,$$

therefore:

$$A_{Ra} \cdot \lambda = S \cdot q \quad \text{and: } S = A_{Ra} \cdot \lambda / q$$

Since the activity of radium compounds amounts to $A_{Ra} = 5 \mu\text{Ci}$, and (10)
 the gas flow rate is $q = 1.10 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3/\text{min}$, then the ^{222}Rn concentration in
 air amounts to $0.63 \mu\text{Ci}/\text{m}^3$.

The tracks were counted at a magnification of 400 times and a
 corresponding field of vision equal to 0.19 mm^2 . The count was taken over
 60 fields of vision, i.e. on an area of 11.4 mm^2 . Tracks of diameters over
 10μ only were counted.

Also the rate of background counts was determined for a clean, not
 previously irradiated foil kept exposed in air with a natural background of
 ^{222}Rn and then etched for five hours. The calculated value of the "background
 counts" for a foil of Trifol TN, as employed in this experiment, was (3.1 ± 0.6)
 tracks/ mm^2 .

The relation between the density of tracks d_{Rn} and the exposure $S \cdot t$ is shown in Table III and in Figure 5.

Table III

$S \cdot t$	$\mu\text{Ci.h/m}^3$	3,78	5,81	7,83	13,23	16,69	20,47	24,23
d_{Rn}	$\frac{\text{tracks}}{\text{mm}^2}$	6,3	9,0	15,2	20,0	25,2	33,6	43,6

where: $d_{Rn} = d_x - d_{\text{background}}$ in tracks/mm²

The relation thus obtained may be expressed by the formula:

$$d_{Rn} = 1.710/S \cdot t - 0.651, \text{ with a correlation coefficient } R = 0.99. \text{ Each point on the curve is obtained from the calculations based on the density of tracks for at least two foils. The calibration coefficient } K = S \cdot t/d_{Rn} \text{ (11) amounts to } (0.59 \pm 0.04) \frac{\mu\text{Ci.h/m}^3}{\text{tracks/mm}^2}.$$

5. Evaluation of the lower limit of detection of ²²²Rn concentration

Assuming that the lower limit of detection of the track number is equal twice the number registered as the background count $d_x = 2d_{\text{nat. run}}$ and the time of exposure of the detector extending over one week, i.e. 168 hours, it is possible to measure, by means of Triafol TN the ²²²Rn concentrations of the order of 10 000 pCi/m³, that is concentrations equal to one third of the concentrations acceptable as an occupational hazard.

The error in the determination of the Radon concentration is $S_x = K \cdot d_{Rn}/t$, and on the basis of a calculated density of tracks, this error amounts to $\pm 20\%$.

6. Preliminary investigations of the ^{222}Rn concentrations by track etch detection methods.

Preliminary investigations of ^{222}Rn concentrations by track etch detection methods were directed towards evaluation and control of the applicability of this method in conditions existing in working places in which an increased radon concentration may occur. This may be in coal (12) mines and other mines. The concentrations which occur in these places are often considerably higher than the average values found in the air at the earth's surface. The investigations were conducted in two coal mines. The track detectors for measuring of ^{222}Rn concentration were made in form of plaques measuring 15 by 40 mm. Where it was feasible, the detectors were mounted on a special plate and were exposed in a device, similar to a tray supported on four legs, 1.50 m high (Fig. 6). The purpose of such a device was to protect the surface of the detectors from damage by water, coal dust and mechanical causes. The exposure trays were of such a geometry to ensure that all surfaces, on which the particles of Rn derivatives could deposit,, were separated from the detector foils by a distance greater than the range of alpha particles coming from RaC'. In each mine, the exposure was carried out in a score or so of measuring stations and for periods of time ranging from a few hours to a few hundred hours. The average ^{222}Rn concentration in air was calculated on the basis of the density of tracks per mm^2 for each separate foil, and in one mine this concentration reached 80 000 pCi/m^3 with a maximum deviation from the mean value not exceeding $\pm 30\%$. In the other mine, the average value of ^{222}Rn concentration amounted to 23 000 pCi/m^3 , with a maximum deviation of $\pm 25\%$. (13)

7. Conclusions

In view of the peculiarities characteristic of measuring the ^{222}Rn concentrations in the mines, the track etch detection method developed by the Central Laboratory for Radiological Protection and employing the Triafol TN detectors, offers many advantages. This method, because of the accumulating of the alpha particle tracks, allows the evaluation of the mean ^{222}Rn concentration during exposure for periods of a few days or weeks or even months. This method is simple, it does not require any electric power or any vacuum devices in the mine. Furthermore, the track etch detectors are characterised by small dimensions, lightness, and may be applied in gaseous mines and in atmosphere of high humidity and temperature. The results obtained indicate the usefulness of the track etch detector method in working sites in which higher ^{222}Rn concentrations are to be expected.

Bibliography

6. Decree of the Minister of Health and Social Welfare and the Minister Plenipotentiary for Exploitation of Nuclear Energy of December 15, 1969 re the maximum permissible doses of ionization radiation and other precautions relative to radiation protection. (Official Gazette, No 1, 1970).

LITERATURA

1. Eck R.L., Lovett D.B., Nelson S.C.: Radon - Daughter Exposure Measurement with Track Etch Films. Health Physics, 16, 617 /1969/.
2. Lovett D.B.: Track Etch Detectors for Alpha Exposure Estimation, Health Physics, 16, 623 /1969/.

3. Becker K.: Alpha Particle Registration in Plastics and its Application for Radon and Neutron Personnel Dosimetry, Health Physics, 16, 113 /1969/
4. Blanc D.: Solid State Track Detectors, The International Summer School on Radiation Protection, Cavtat 21 - 30 Sept. 1970
5. Benton E.V.: A Study of Charged Particle Tracks in Cellulose Nitrate, Report TR-68-14, January 22/1968/
6. Zarządzenie Ministra Zdrowia i Opieki Społecznej oraz Pełnomocnika Rządu d/s Wykorzystania Energii Jądrowej z dnia 15 grudnia 1969 r. sprawie największych dopuszczalnych dawek promieniowania jonizującego oraz innych wskaźników z zakresu ochrony przed promieniowaniem. /Mon.Pol.nr 1, 1970r./



Fig. 1 - Microscopic view of etched tracks of
alpha particles emanated by radon 222

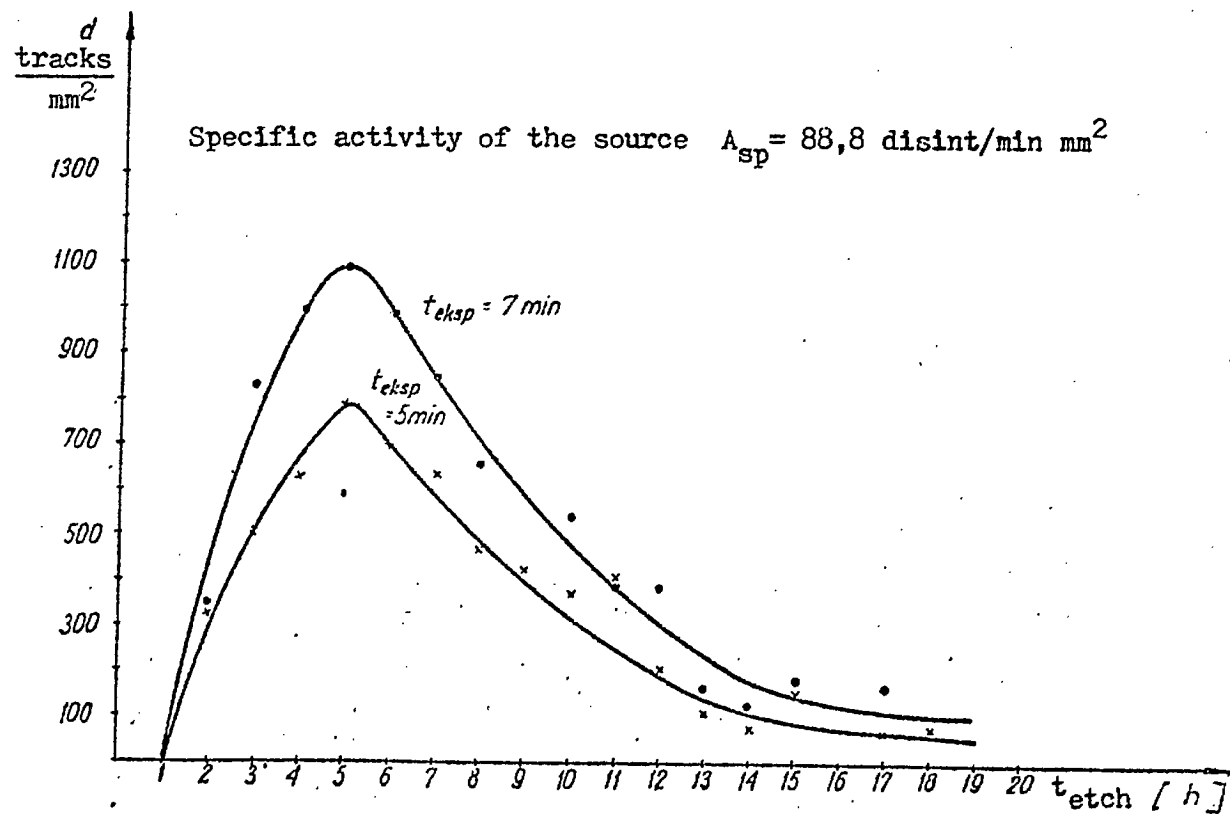


Fig. 2 - Relation between the density of tracks and etching time of a foil in 28% KOH at 60°C.

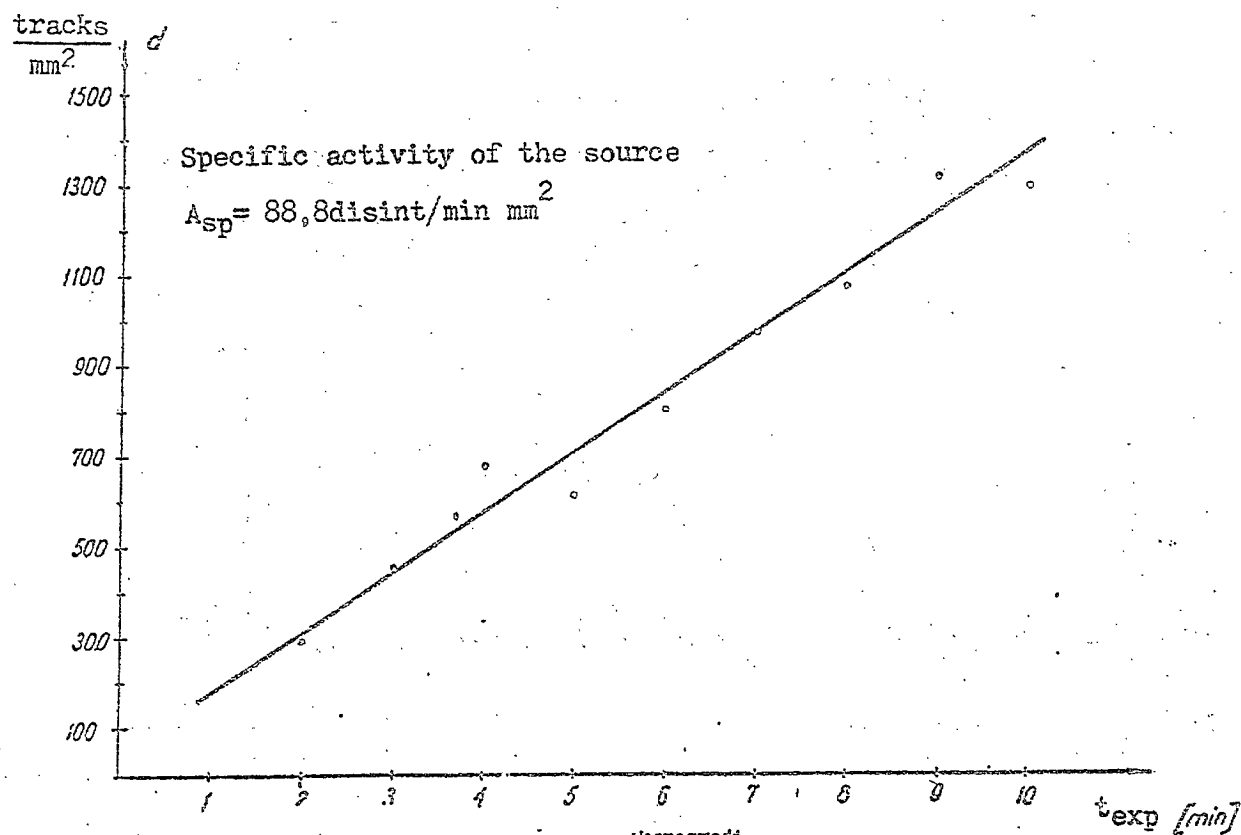


Fig. 3 - Relation between the density of tracks and the time of exposure with a constant activity of the source of alpha particles.

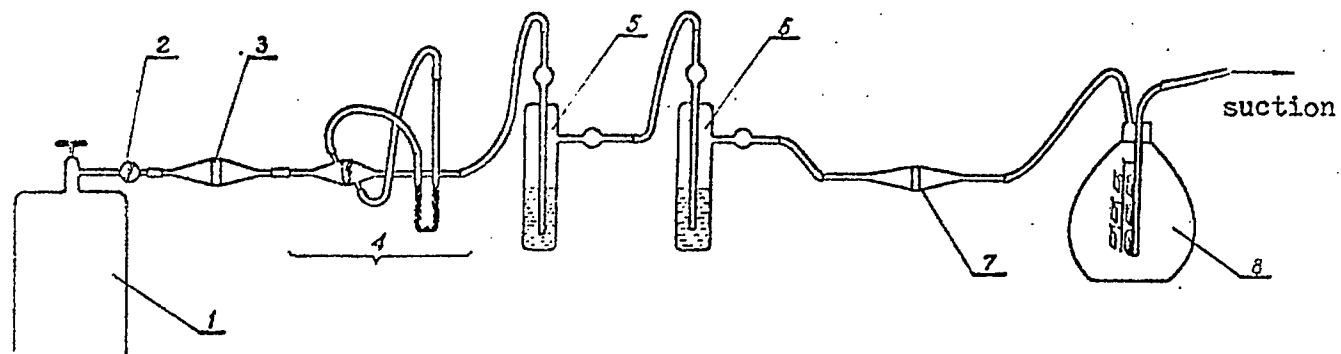


Fig. 4 - Schematic view of a Rn^{222} generator for irradiation of foils with a determined exposure (S.t)

- 1 - Compressed air bottle
- 2 - Reduction valve
- 3 - Primary filter
- 4 - Flowmeter

- 5 - Bubbler with distilled water
- 6 - Bubbler with standard solution Ra^{226}
- 7 - Aerosol filter
- 8 - Irradiation chamber for track detectors.

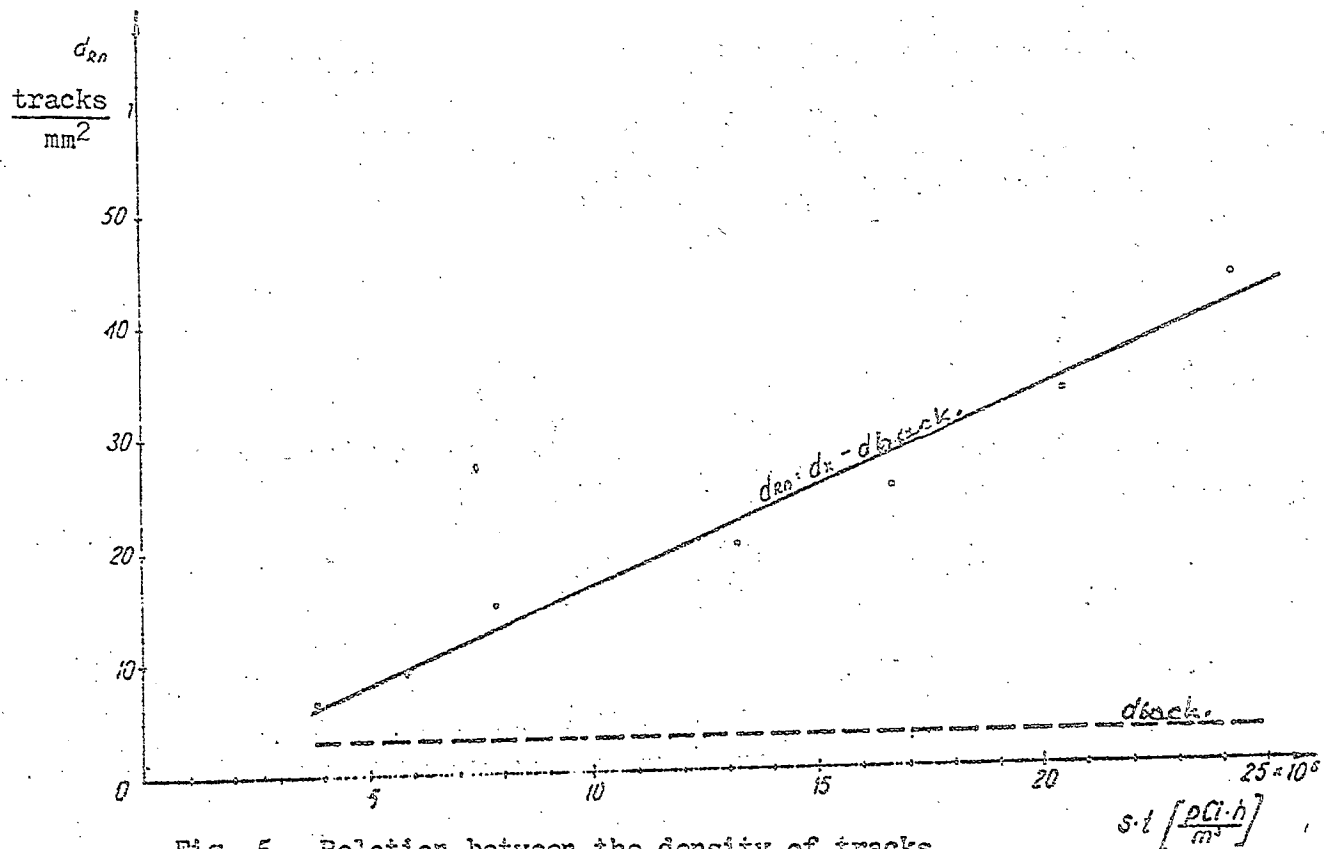


Fig. 5 - Relation between the density of tracks and the time of exposure to Radon 222, expressed as a product of concentration and time.

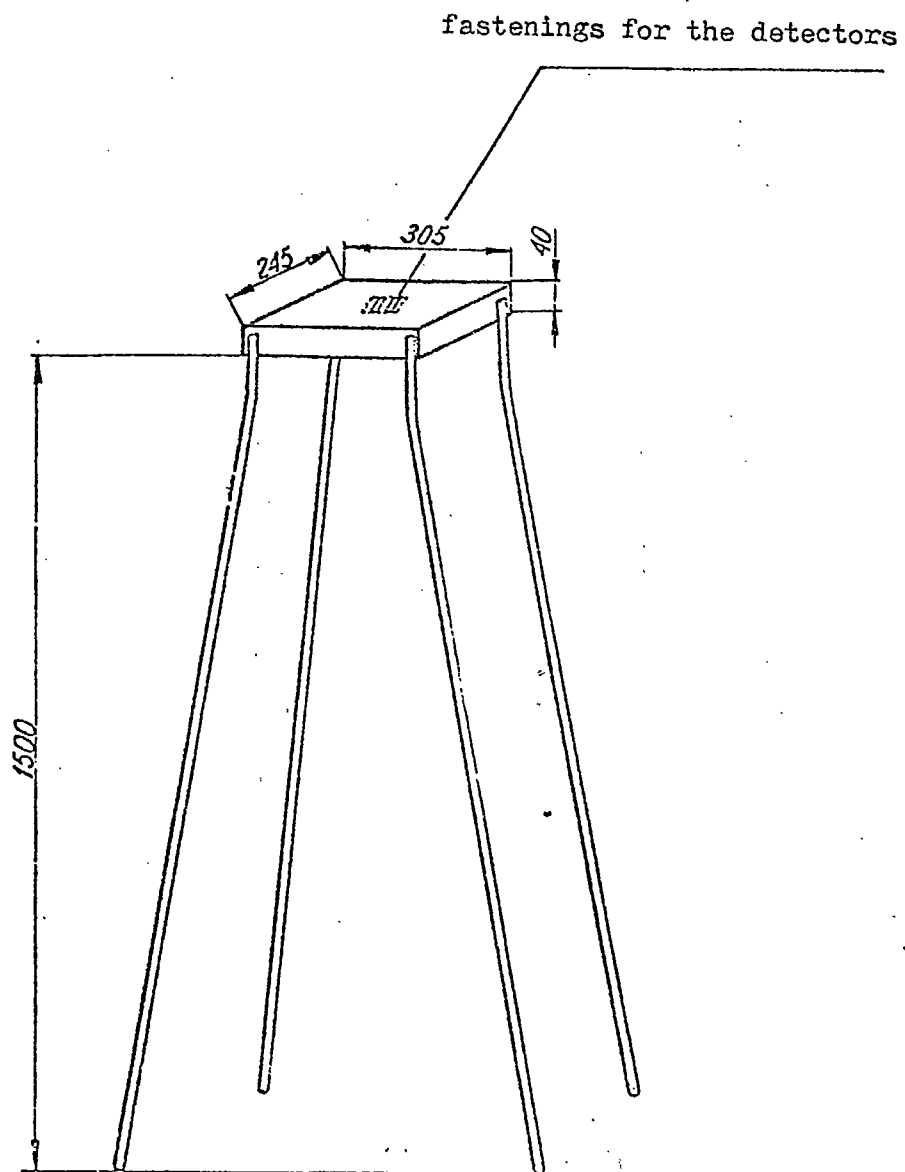


Fig. 6 - Device for irradiation of track detectors in mines.

REFERENCE

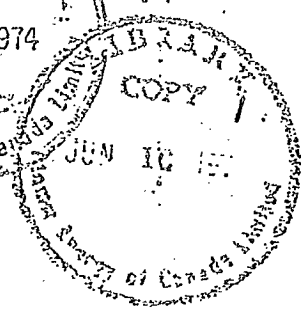
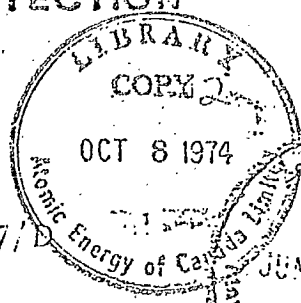
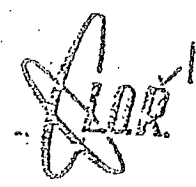
02059/74

CLOR-97

CLOR-97/D

CENTRALNE LABORATORIUM
OCHRONY RADIOLOGICZNEJ

CENTRAL LABORATORY FOR
RADIOLOGICAL PROTECTION



Raport nr CLOR - 97/D

WYKORZYSTANIE
METODY DETEKЦИИ ŚLADOWEJ
DO POMIARU
STĘŻENIA RADONU-22
W POWIETRZU

M. Biernacka
K. Mamont-Cieśla
A. Wasilewski

WARSZAWA

1973

XEROXED IN SDDO

DATE 6/1/74

This report has been reproduced directly from
the best available copy

Распространяет:

ИНФОРМАЦИОННЫЙ ЦЕНТР ПО ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГИИ
при Учреждении по Атомной Энергии
Дворец Культуры и Науки
Варшава, Польша

Available from:

NUCLEAR ENERGY INFORMATION CENTER
ATOMIC ENERGY OFFICE
Palace of Culture and Science
Warsaw, POLAND

Drukuje i rozprowadza:

OŚRODEK INFORMACJI O ENERGII JĄDROWEJ
Urzędu Energii Atomowej
Warszawa, Pałac Kultury i Nauki

Wydaje Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej

Nakład 545 egz., Objętość ark. wyd. 1, Ark. druk. 1,25. Data
złożenia maszynopisu przez autora X.1973 r., Oddano do druku
30.X.1973 r., Druk ukończono w grudniu 1973 r. SP-09/250/66,
Zam. 277/73



02059 / 74

CENTRALNE LABORATORIUM OCHRONY RADIOLOGICZNEJ
CENTRAL LABORATORY FOR RADIOLOGICAL PROTECTION
Warsaw, Poland

Report nr ULOR - 97/D

WYKORZYSTANIE METODY DETEKЦИИ ŚLADOWEJ DO POMIARU
STĘŻENIA RADONU -222 W POWIETRZU

TRACK ETCH DETECTOR METHOD FOR MEASUREMENT
OF RADON -222 CONCENTRATION IN AIR

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ МЕТОДА ДЕТЕКЦИИ СЛЕДОВ ДЛЯ
ИЗМЕРЕНИЯ КОНЦЕНТРАЦИИ РАДОНА -222 В ВОЗДУХЕ

M. Biernacka
K. Mamont-Cieśla
A. Wasilewski

WARSZAWA
1973

This report has been reproduced directly from
the best available copy

Распространяет:

ИНФОРМАЦИОННЫЙ ЦЕНТР ПО ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГИИ
при Учреждении по Атомной Энергии
Дворец Культуры и Науки
Варшава, ПОЛЬША

Available from:

NUCLEAR ENERGY INFORMATION CENTER
ATOMIC ENERGY OFFICE
Palace of Culture and Science
Warsaw, POLAND

Drukuje i rozprawadza:

OŚRODEK INFORMACJI O ENERGII JĄDROWEJ
Urzędu Energii Atomowej
Warszawa, Pałac Kultury i Nauki

Wydaje Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej

Nakład 545 egz., Objętość ark. wyd. 1, Ark. druk. 1,25. Data
złożenia maszynopisu przez autora X.1973 r., Oddano do druku
30.X.1973 r., Druk ukończono w grudniu 1973 r. SP-09/250/66,
Zam. 277/73



02059 / 74

CENTRALNE LABORATORIUM OCHRONY RADIOLOGICZNEJ
CENTRAL LABORATORY FOR RADIOLOGICAL PROTECTION
Warsaw, Poland

Report nr CLOR - 97/D

WYKORZYSTANIE METODY DETEKЦИИ ŚLADOWEJ DO POMIARU
STĘŻENIA RADONU -222 W POWIETRZU

TRACK ETCH DETECTOR METHOD FOR MEASUREMENT
OF RADON -222 CONCENTRATION IN AIR

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ МЕТОДА ДЕТЕКЦИИ СЛЕДОВ ДЛЯ
ИЗМЕРЕНИЯ КОНЦЕНТРАЦИИ РАДОНА -222 В ВОЗДУХЕ

M. Biernacka
K. Mamont-Cieśla
A. Wasilewski

WARSZAWA
1973

STRESZCZENIE

W pracy przedstawiono możliwość wykorzystania detektorów śladowych z folii triacetanu celulozy Triafol TN do pomiarów stężenia ^{222}Rn w powietrzu. Omówiono cechy charakterystyczne tych detektorów, ich kalibrację przy pomocy generatora wzorcowych stężeń ^{222}Rn oraz wstępne pomiary wykonane metodą detekcji śladowej w kopalniach.

SUMMARY

The possibility of using cellulose triacetate detectors /Triafol TN/ for measurements of ^{222}Rn concentration in air, has been discussed. The features of these detectors and their calibration in the radon gas generator, have been described. The results of field testing in mines are presented.

РЕЗЮМЕ

Представлено возможность употребления следовых детекторов из фольги трехуксусной целлюлозы Триафоль TN для измерений концентрации ^{222}Rn в воздухе. Указано характеристические свойства этих детекторов и калибрация с помощью генератора с образцовой концентрацией ^{222}Rn , а также предварительные измерения произведены методом детекции следов в шахтах.

1. WSTĘP

Możliwość rejestracji cząstek alfa metodą śladową przy pomocy folii plastikowych jest podstawą zastosowania tych folii do pomiaru stężenia ^{222}Rn w powietrzu [1]. Ze względu na integrację rejestrowanych cząstek alfa folie plastikowe znalazły także zastosowanie w dozymetrii indywidualnej pozwalając oszacować dawkę na płuca otrzywaną przez osoby zatrudnione w atmosferze zanieczyszczonej ^{222}Rn i jego produktami rozpadu [2]. Dozymetry śladowe są nieczułe na światło oraz promieniowanie X, gamma, beta, tak że rejestracja cząstek alfa może zachodzić w obecności wysokiego tła tego promieniowania. Stabilność w czasie utajonych, niewytrawionych śladów uzyskanych na skutek zmian struktury materiału folii, spowodowanych jonizacją przez cząstki alfa, jest bardzo dobra /dla substancji organicznych wynosi kilka lat/ i praktycznie niezależna od warunków otoczenia, takich jak wilgotność czy temperatura, aż do temperatur zbliżonych do punktu mięknięcia folii tzn. około 150°C dla błon z octanu celulozy.

W temperaturze pokojowej zanikania utajonych śladów nie obserwuje się [3].

Rejestracja cząstek alfa w materiale folii może zachodzić, gdy strata energii dE w warstwie materiału o grubości dx jest dostatecznie wysoka. Dla każdego rodzaju folii określona jest krytyczna wartość $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\min}$, poniżej której detekcja jest niemożliwa. Dla octanu celulozy próg detekcji wynosi $1,41 \text{ MeV mg}^{-1} \text{ cm}^2$ [4]. Ponieważ dla energii cząstek alfa wyższych niż pewna wartość graniczna /wynosząca około $3,8 \text{ MeV}$ dla folii z pochodnych celulozy - wg Bentona [5] / strata energii jest zbyt mała, by spowodować jonizację, cząstki alfa emitowane przez pochodno ^{222}Rn osadzone na powierzchni detektora nie będą rejestrowane. "Zapisywane" będą jedynie cząstki alfa, których energia początkowa zostanie obniżona przy przejściu przez warstwę powietrza do wartości poniżej krytycznego kryterium, a więc cząstki pochodzące od ^{222}Rn w atmosferze i jego pochodnych. Wszystkie te szczególne cechy błon śladowych czynią je unikalnym materiałem do pomiaru stężenia ^{222}Rn w powietrzu.

Utrwalony obraz śladów cząstek alfa /rys.1/, który może być oglądany pod mikroskopem przy kilkusetkrotnym powiększeniu, uzyskujemy przez wytrawienie folii w specjalnym odczynniku chemicznym. Wytrawione ślady uzyskane w foliach plastikowych mają kształt stożków o podstawach kołowych lub eliptycznych. Rodzaj odczynnika

chemicznego, jego stężenie oraz temperaturę dobiera się odpowiednio dla danej folii. W Centralnym Laboratorium Ochrony Radiologicznej stosowane folię Triafol TN /trój-
octan celulozy/ firmy Bayer o grubości $36,2 \text{ mg cm}^{-2}$. Folia ta wymagała trawienia w 28% KOH, w temperaturze 60°C .

2. OPTYMALNY CZAS TRAWIENIA FOLII

W celu doboru odpowiedniego, optymalnego dla folii czasu trawienia "naświetlono" dwa kawałki błony Triafol TN o wymiarach $15 \times 40 \text{ mm}$ cząstkami alfa pochodzącymi od otwartego, powierzchniowego źródła ^{226}Ra o aktywności właściwej równej $88,8 \text{ rozp min}^{-1} \text{ mm}^{-2}$. Czasy ekspozycji wynosiły odpowiednio 5 i 7 min. Następnie trawiono folie w 28% KOH, w temperaturze 60°C zaczynając od 0,5 godziny do 19 godzin. Po każdej godzinie trawienia folie były myte, suszone, a następnie zliczano z nich ślady pod mikroskopem, przy powiększeniu 1008 razy/pole widzenia mikroskopu wynosiło $0,029 \text{ mm}^2$. Ślady zliczano z 40 pól widzenia dla każdej folii, a więc z powierzchni $1,16 \text{ mm}^2$. Otrzymana zależność gęstości śladów w funkcji czasu trawienia jest przedstawiona w tabeli I i na rys.2.

Tabela I

t_{traw}	h	0,5	1	2	3	4	5	6	7	8	9
d_1	$\frac{\text{ślady}}{\text{mm}^2}$	0	0	338	510	630	790	710	640	480	430
d_2	$\frac{\text{ślady}}{\text{mm}^2}$	0	0	336	826	993	1100	980	850	660	600
t_{traw}	h	10	11	12	13	14	15	17	18	19	
d_1	$\frac{\text{ślady}}{\text{mm}^2}$	380	420	205	117	83	159	83	90	0	
d_2	$\frac{\text{ślady}}{\text{mm}^2}$	550	386	395	165	130	187	173	134	0	

gdzie : d_1 - ilość śladów na mm^2 dla $t_{\text{eksp}} = 5 \text{ min}$

d_2 - ilość śladów na mm^2 dla $t_{\text{eksp}} = 7 \text{ min}$

Z przebiegów $d=f/t_{\text{traw}}$ przy $t_{\text{eksp}} = \text{const}$ widać, że dla początkowego okresu trawienia występuje niewielka liczba śladów. Dla czasów trawienia równych 2, a nawet 3 godziny obraz powstałych śladów jest niezbyt wyraźny, ich średnica jest rzędu pojedynczych mikronów. Bardzo małe ślady nie są w ogóle "rozróżnialne" pod mikroskopem. Ze wzrostem czasu trawienia średnica wi-
dzialnych śladów wzrasta i pojawiają się nowe, małe "dziury". Maksymalna gęstość śladów na mm^2 występuje dla czasu trawienia około 5 godzin. Ponieważ otrzymujemy przy tym również bardzo wyraźne ślady, o dużych średnicach rzędu 10μ , czas trawienia równy 5 godzin został wybrany dla folii Triafol TN jako czas optymalny. Dla czasów trawienia powyżej zaobserwowanego maksimum, które zależy głównie od rodzaju folii i warunków trawienia, średnica większych śladów jeszcze wzrasta, choć wyrazistość "dziur" jest gorsza, natomiast mniejsze ślady zanikają, tak że gęstość wyraźnie maleje.

3. ZALEŻNOŚĆ GĘSTOŚCI ŚLADÓW OD CZASU EKSPOZYCJI PROMIENIOWANIEM ALFA

W celu znalezienia zależności gęstości śladów $d/\text{śladów}/\text{mm}^2$ dla folii Triafol TN w funkcji czasu eks-

pozycji t/min/ promieniowaniem alfa wykonane następujący eksperyment. Napromieniono kolejno 10 kawałków folii cząstkami alfa z otwartego, powierzchniowego źródła ^{226}Ra stosując czasy ekspozycji odpowiednio dla kolejnych folii: 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 i 10 minut. Po wytrawieniu zliczone ślady w warunkach jak w punkcie 2. Otrzymana zależność $d=f/t_{\text{eksp}}$ przedstawiona jest w tabeli II i na rys. 3.

Tabela II

t_{eksp}	min	1	2	3	4	5	6
d'	$\frac{\text{ślady}}{\text{pole widz.}}$	5,4	8,6	13,2	19,8	17,6	23,2
d	$\frac{\text{ślady}}{\text{mm}^2}$	186	296	455	680	610	800
t_{eksp}	min	7	8	9	10		
d'	$\frac{\text{ślady}}{\text{pole widz.}}$	28,2	31,2	33,4	37,8		
d	$\frac{\text{ślady}}{\text{mm}^2}$	970	1075	1320	1300		

gdzie: d' - ilość śladów na pole widzenia mikroskopu

d - ilość śladów na mm^2

Uzyskana zależność ma charakter $d=129,4 t + 57,4$, przy współczynniku korelacji $R = 0,99$.

4. KALIBRACJA FOLII W GENERATORZE RADONU

Dla określenia zależności gęstości śladów na folii [w śladach/ mm^2] od ekspozycji ^{222}Rn wyrażonej iloczynem stężenia przez czas ekspozycji przeprowadzone "naświetlenie" folii w generatorze wzorcowych koncentracji ^{222}Rn . Generator radonu pracował na zasadzie aeracji roztworu chlorku radu o aktywności $5\ \mu\text{Ci}$, która przy odpowiednim przepływie wypłukującego ^{222}Rn powietrza zapewniała koncentracje przekraczające dopuszczalne wartości w warunkach narażenia zawodowego. Schemat urządzenia generującego ^{222}Rn pokazany jest na rys.4. Zasada pracy urządzenia jest następująca: sprężone powietrze z butli przechodzi przez reduktor oraz filtr wstępny o wysokiej sprawności zatrzymywania cząsteczek promieniotwórczych. Wielkość przepływu q mierzona jest przepływomierzem pracującym na zasadzie pomiaru różnicy ciśnień manometrem cieczowym, przed i za zwężką. Przechodzące przez roztwór ^{226}Ra powietrze wypłukuje ^{222}Rn i jego pochodną z generatora. Sam generator ^{222}Rn składa się z zestawu dwu szklanych barboterów o objętości $0,5\ \text{l}$ każdy. Pierwszy z nich wypełniony jest $100\ \text{ml}$ wody destylowanej, co zapobiega zbyt szybkiemu parowaniu wody w drugim z kolei barboterze, zawierającym $100\ \text{ml}$ roztworu ^{226}Ra o aktywności $5\ \mu\text{Ci}$. Roztwór ^{226}Ra otrzymano z roz-

oieńczenia wzorcowego źródła produkcji Amersham o aktywności 100 μCi występującego w postaci Ra/BaCl_2 . Roztwór rozcieńczający stanowił 0,1 n HCl zawierający 10 mg Ba/ml . Przepływ q był rzędu 1 l/min, aby uniknąć "wychłapywania" roztworu ^{226}Ra . Pochodzą ^{222}Rn w postaci aerozoli promieniotwórczych wypłukiwane z roztworu osadzają się na filtrze i dzięki temu do dalszej części układu przechodzi jedynie wolny, gazowy radon. Naświetlanie detektorów odbywa się w specjalnej komorze o objętości 50 l, w której są one swobodnie zawieszane.

Wprowadźmy poniższe oznaczenia:

- A_{Ra} - aktywność ^{226}Ra w roztworze [μCi]
 E_{Rn} - szybkość emanacji ^{222}Rn z roztworu [^{226}Ra $\mu\text{Ci min}^{-1}$]
 λ - stała rozpadu ^{222}Rn [min^{-1}]
 q - natężenie przepływu powietrza [$\text{m}^3 \text{min}^{-1}$]
 S - stężenie ^{222}Rn w powietrzu po jego przejściu przez barboter [$\mu\text{Ci m}^{-3}$]

Ponieważ :

$$S = E_{\text{Rn}} / q \quad \text{skąd} \quad E_{\text{Rn}} = S \cdot q$$

Jednocześnie :

$$E_{\text{Rn}} = A_{\text{Ra}} \cdot \lambda$$

więc :

$$A_{\text{Ra}} \cdot \lambda = S \cdot q \quad \text{skąd} \quad S = A_{\text{Ra}} \cdot \lambda / q$$

Ponieważ aktywność roztworu związku radu A_{Ra} wynie-
si $5 \mu Ci$, natężenie przepływu powietrza $q = 1 \cdot 10^{-3} m^3/min$,
to stężenie ^{222}Rn w powietrzu równa jest $0,63 \mu Ci/m^3$.

Ślady zliczane przy powiększeniu mikroskopu 400
razy/pole widzenia wyniosły $0,19 mm^2$, w 60 polach widze-
nia dla każdej folii /z powierzchni $11,4 mm^2$. Zlicza-
no jedynie ślady o średnicy powyżej 10μ .

Określono także "bieg własny" dla czystej, uprzed-
nio nie napromienianej folii, przechowywanej w pe-
wietrzu o naturalnej zawartości ^{222}Rn , która została wyt-
warzona przez okres 5 godzin. Obliczony "bieg własny"
folii Triafol TN użytej do pomiarów wyniósł $13,1 \pm 0,6$ /
śladów/ mm^2 .

Zależność gęstości śladów d_{Rn} w funkcji ekspozyc-
ji /S.t/ przedstawiona jest w tabeli III i na rys. 5.

Tabela III

S.t	$\mu Ci \cdot h/m^3$	3,78	5,81	7,83	13,23	16,69	20,47	24,25
d_{Rn}	ślady/ mm^2	6,3	9,0	15,2	20,0	25,2	33,6	43,6

gdzie: $d_{Rn} = d_x = d_b$ w śladach na mm^2 .

Otrzymana zależność ma charakter $d_{Rn} = 1,710/S.t/ - 0,651$
przy współczynniku korelacji $R = 0,99$. Każdy punkt wyk-
resu jest otrzymany z obliczeń gęstości śladów dla przy-

najmniej dwóch folii. Współczynnik kalibracji $K = S \cdot t / d_{Rn}$ wynosi $0,59 \pm 0,04 / \frac{\mu Ci \cdot h / m^3}{\text{ślady} / m^2}$

5. OSZACOWANIE DOLNEJ GRANICY POMIARU STĘŻENIA ^{222}Rn

Przyjmując jako dolną granicę pomiaru ilość śladów na m^2 równą podwójnej ich ilości rejestrowanej dla biegu własnego $d_x = 2d_b$ w przy czasie ekspozycji detektora $t = 1$ tydzień = 168 godzin możemy za pomocą folii Triafol TN mierzyć stężenie ^{222}Rn rzędu $10\ 000 \mu Ci / m^3$, a więc równe $1/3$ stężenia dopuszczalnego dla zawodowego narażenia [6]

Błąd wyznaczenia stężenia radonu $S_x = K \cdot d_{Rn} / t$, na podstawie obliczonej gęstości śladów $d_{Rn} \pm 0,07 d_{Rn}$ wynosi $\pm 20\%$.

6. WSTĘPNE BADANIA STĘŻENIA ^{222}Rn METODĄ DETEKTORÓW ŚLADOWYCH

Wstępne badania stężenia ^{222}Rn metodą detektorów śladowych miały na celu ocenę i sprawdzenie przydatności tej metody w warunkach istniejących w zakładach pracy, w których mogą występować podwyższone stężenia radonu. Ma to niekiedy miejsce w kopalniach węgla kamiennego.

go i niektórych minerałów. Występujące tam stężenia ^{222}Rn w powietrzu przekraczają nieraz znacznie przeciętne wartości stężeń w powietrzu atmosferycznym na powierzchni ziemi. Badania przeprowadzono w dwa kopalniach węgla kamiennego. Folie śladowe do pomiaru stężenia ^{222}Rn były przygotowane w postaci ponumerowanych plakietek o wymiarach 15 x 40 mm. Tam, gdzie było to możliwe folie montowane na specjalnej płytce i poddawane ekspozycji w urządzeniu mającym kształt odwróconej tacy aluminiowej opartej na czterech nogach, o wysokości 1,50 m /rys.6/. Urządzenie to miało na celu ochronę powierzchni detektora przed działaniem wody, pyłu węglowego oraz przed uszkodzeniami mechanicznymi. "Tace" ekspozycyjne zapewniały taką geometrię, że wszystkie powierzchnie, na których mogłyby się osadzać pochodne radonu były oddalone od folii o odległość większą niż zasięg cząstek alfa od RaC'' . W każdej kopalni wykonywano ekspozycję w kilkunastu punktach pomiarowych, przez okres od kilkunastu do kilkuset godzin. Średnie stężenie ^{222}Rn w powietrzu obliczone na podstawie gęstości śladów/ mm^2 dla poszczególnych folii, wynosiło w jednej kopalni 80 000 pCi/ m^3 przy maksymalnym odchyleniu od wartości średniej nie przekraczającym $\pm 30\%$. W drugiej kopalni średnia wartość stężenia wynosiła 23000 pCi/ m^3 przy maksymalnym odchyleniu $\pm 25\%$.

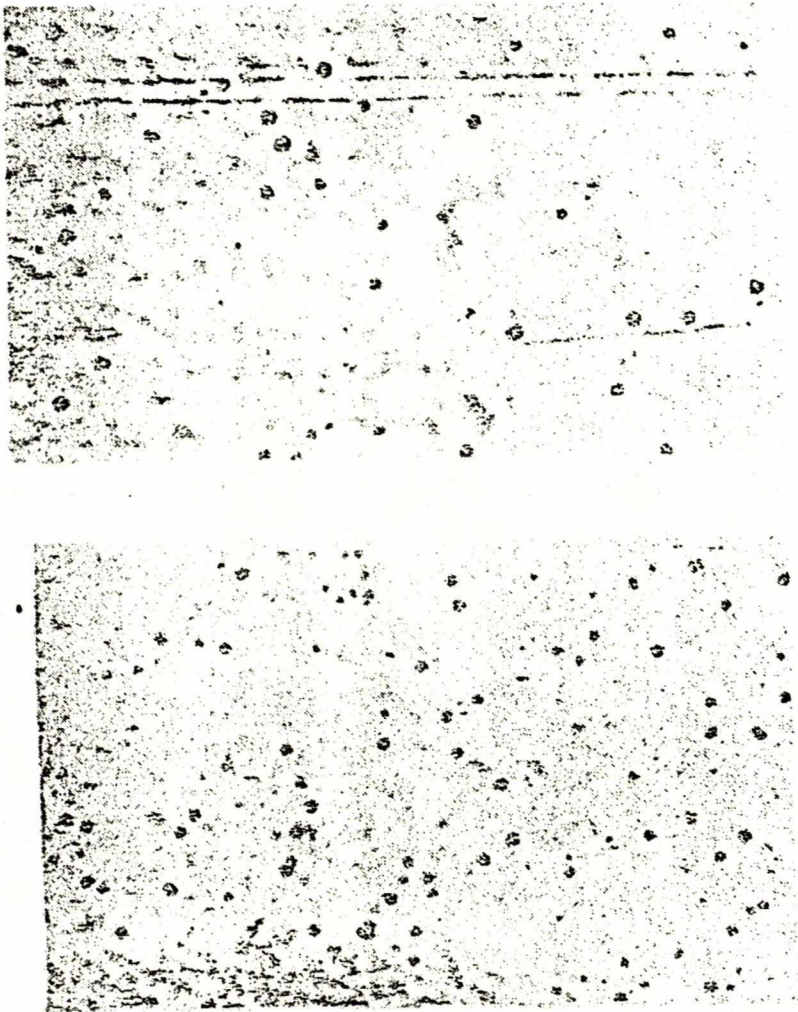
7. WNIOSKI

Ze względu na specyfikę pomiarów stężenia ^{222}Rn w środowisku kopalni, opracowana w Centralnym Laboratorium Ochrony Radiologicznej metoda detektorów śladowych z zastosowaniem folii Triafol TF wykazuje wiele cennych zalet. Metoda ta dzięki sumowaniu śladów od cząstek alfa pozwala oszacować średnie stężenie ^{222}Rn w czasie trwania ekspozycji, dla kilku dni, tygodni a nawet miesięcy. Jest ona prosta, nie wymaga zasilania sieciowego i aparatury próżniowej na dole w kopalni. Ponadto detektory śladowe charakteryzują się niewielkimi wymiarami oraz małym ciężarem i mogą być stosowane w warunkach zagrożenia gazowego, dużych wilgotności i wysokich temperatur powietrza badanego. Uzyskane wyniki wskazują na celowość stosowania metody detektorów śladowych w zakładach pracy, w których mogą występować podwyższone stężenia ^{222}Rn .

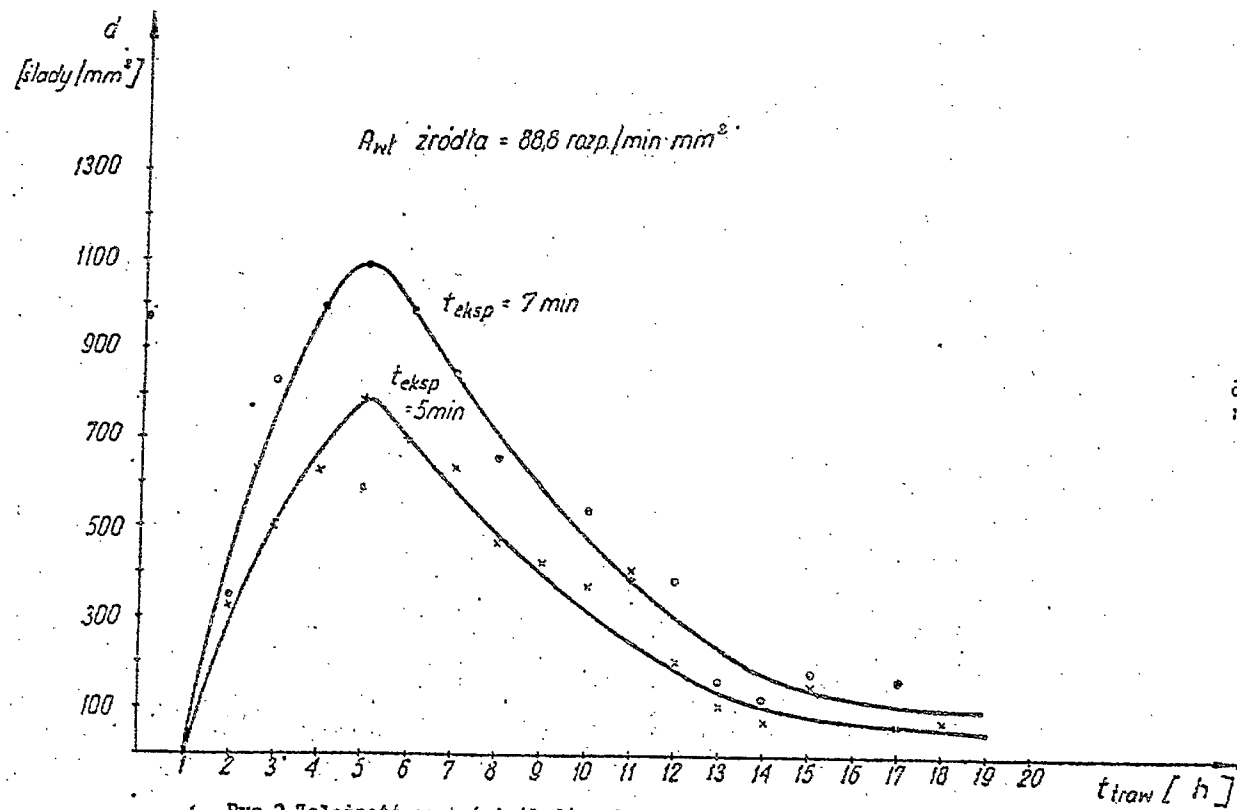
LITERATURA

1. Rock R.L., Lovett D.B., Nelson S.C.: Radon - Daughter Exposure Measurement with Track Etch Films. Health Physics, 16, 617 /1969/.

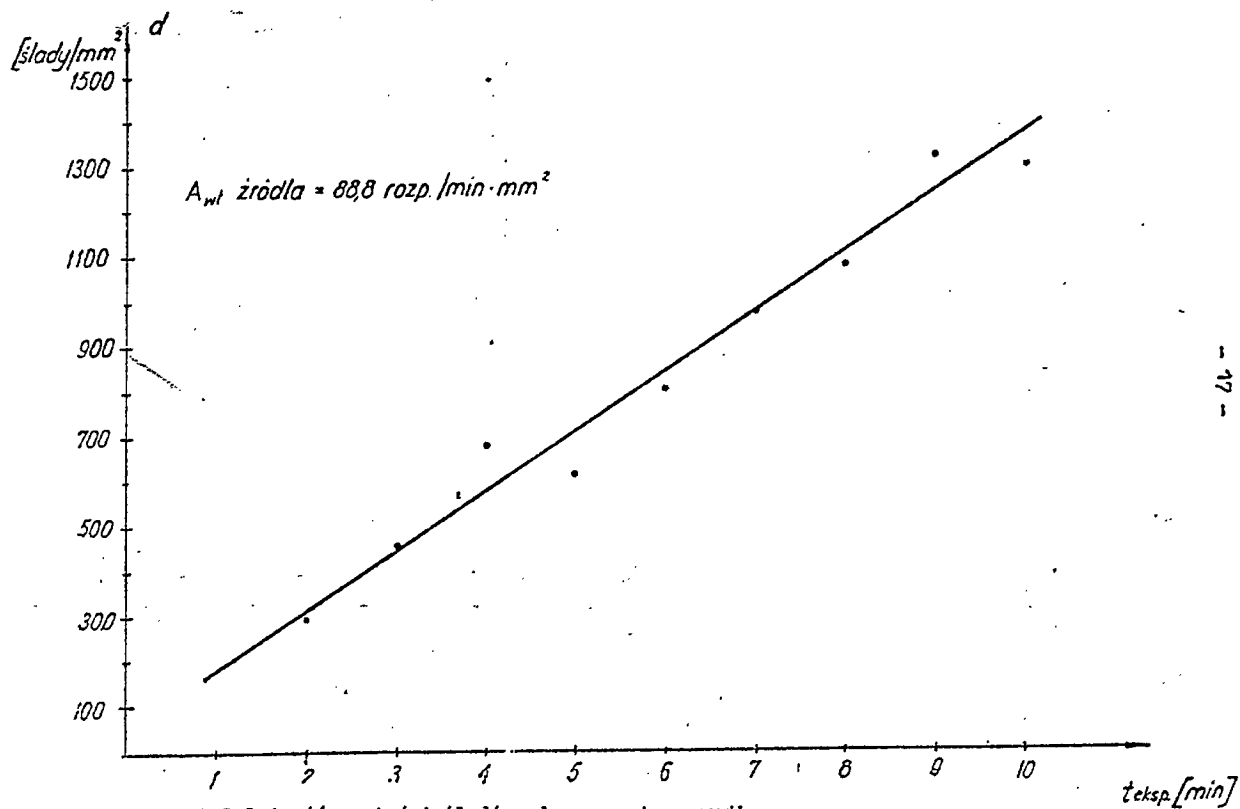
2. Lovett D.B.: Track Etch Detectors for Alpha Exposure Estimation, Health Physics, 16, 623 /1969/
3. Becker K.: Alpha Particle Registration in Plastics and its Application for Radon and Neutron Personnel Dosimetry, Health Physics, 16, 113 /1969/
4. Blanc D.: Solid State Track Detectors, The International Summer School on Radiation Protection, Cavtat 21 - 30 Sept. 1970
5. Benton E.V.: A Study of Charged Particle Tracks in Cellulose Nitrate, Report TR-68-14, January 22/1968/
6. Zarządzenie Ministra Zdrowia i Opieki Społecznej oraz Pełnomocnika Rządu d/s Wykorzystania Energii Jądrowej z dnia 15 grudnia 1969 r. sprawie największych dopuszczalnych dawek promieniowania jonizującego oraz innych wskaźników z zakresu ochrony przed promieniowaniem. /Mon.Pol.nr 1, 1970r./



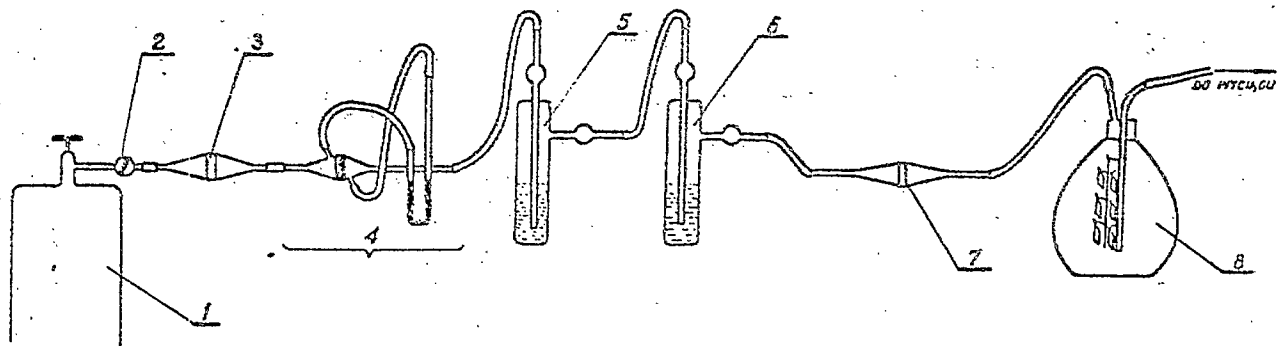
Rys. 1. Obraz mikroskopowy wytrawionych śladów cząstek alfa pochodzących od radonu-222 .



Rys.2 Zależność gęstości śladów od czasu trawienia folii w 28% KOH, w temperaturze 60°C.

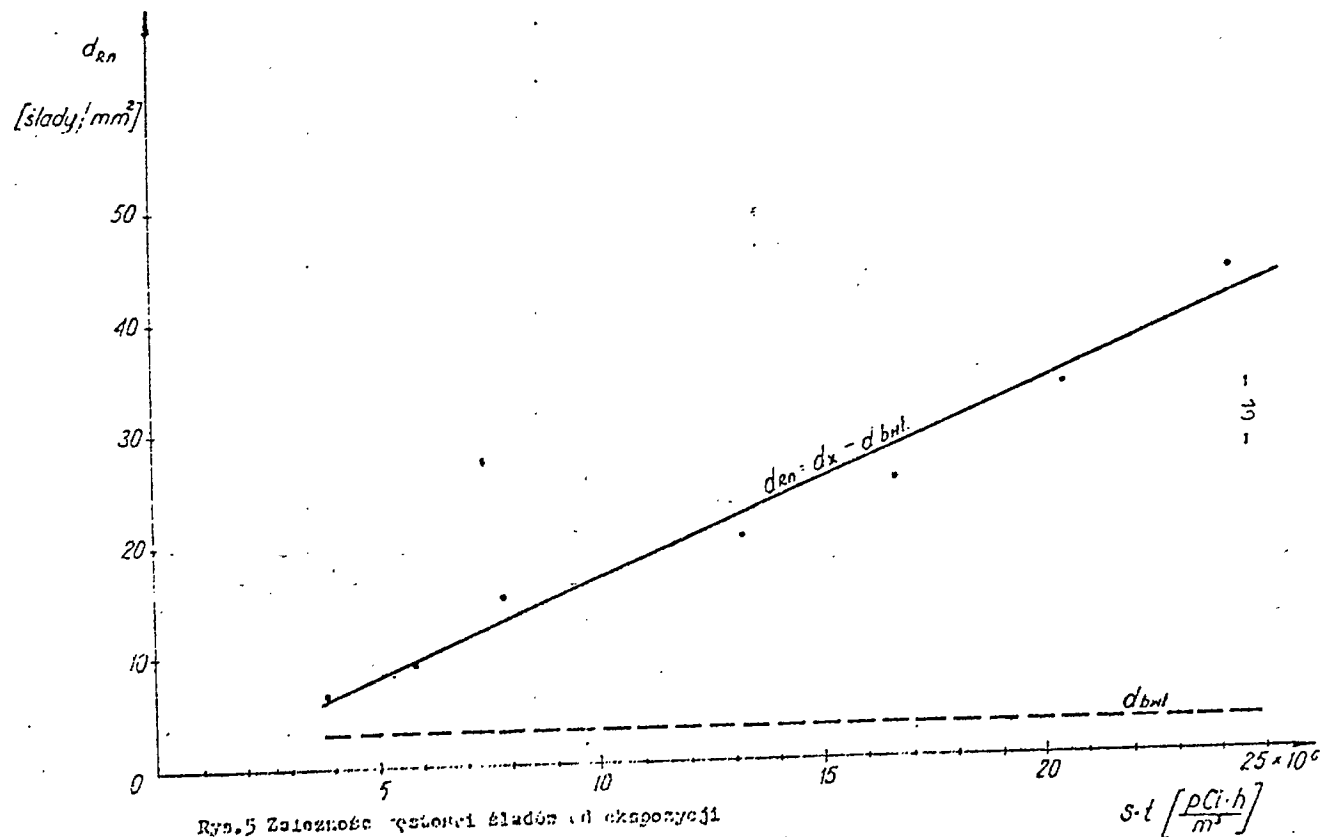


Rys. 3 Zależność gęstości śladów od czasu ekspozycji
 dla stałej aktywności źródła cząstek alfa.



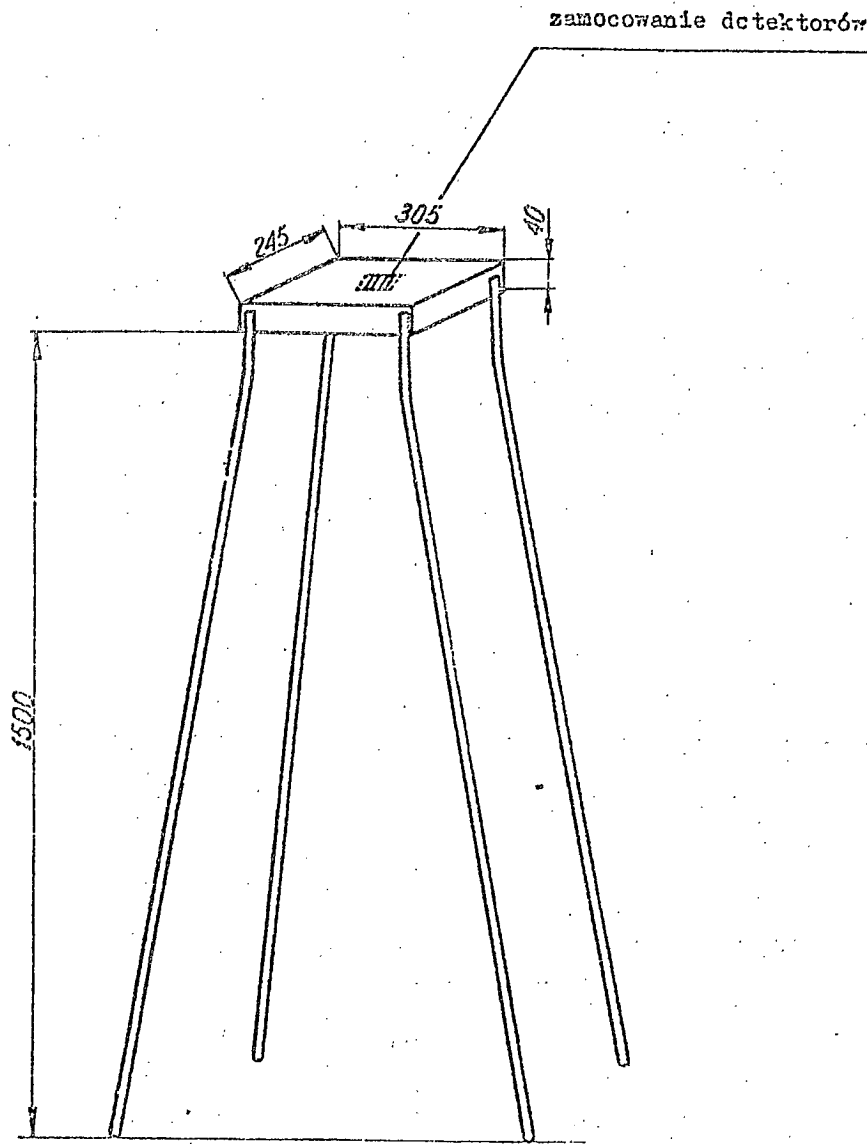
Rys.4 Schemat ideowy generatora Rn-222 służącego do
 napromieniania folii określoną ekspozycją /S.t/

- | | |
|-----------------------------------|---|
| 1 - butla ze sprężonym powietrzem | 5 - barbotaer z wodą destylowaną |
| 2 - reduktor | 6 - barbotaer z roztworem wzorcowym Ra-226 |
| 3 - filtr wstępny | 7 - filtr aerozoli |
| 4 - przepływomierz | 8 - komora : napromieniania
detektorów śladowych |



Rys. 5 Zależność pozostałości śladów od ekspozycji
 radionuklidu ^{222}Rn w powietrzu, wloczynem stężeń przez czas

$$S \cdot t \left[\frac{\text{Pci} \cdot \text{h}}{\text{m}^2} \right]$$



Rys.6 Urządzenie do napromieniania detektorów śladowych w kopalniach.

