Прогресс в разработках трековых радиометров для радоновых исследований

© В. А. Николаев

Радиевый институт им. В. Г. Хлопина, 194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский пр., д. 28; e-mail: nikolaev@khlopin.ru

Получена 18.06.2018, после доработки 20.07.2018, принята к публикации 23.07.2018

УДК 539.107.4

Выполнен обзор радиометров на основе твердотельных трековых ядерных детекторов, разработанных для радоновых исследований в течение последних 20 лет. Рассмотрены устройства для измерений объемной активности радона, торона, дочерних продуктов их распада, скорости эксгаляции радона из различных сред (почвы, воды, строительных материалов). Отмечается значительный прогресс в разработках радиометров для одновременных измерений концентраций радона и торона, а также прямых измерений концентраций продуктов их распада.

Ключевые слова: твердотельные трековые ядерные детекторы, радон, торон, продукты распада радона и торона, измерение концентраций.

DOI: 10.1134/S0033831119040026

Введение

Для радоновых исследований в мировой научной практике разработано множество методов и приборов. В последние 20 лет интересы исследователей обратились не только к определению объемной активности (OA)²²²Rn (радона) и его дочерних продуктов распада (ДПР) в различных средах, но и к соответствующим величинам для ²²⁰Rn (торона). Широко стали применяться также измерения плотностей потоков (скоростей эксгаляции) радона и торона, выходящих из грунта, воды, стройматериалов в атмосферу. Это объясняется большей информативностью этих величин по сравнению с ОА, введением на них ряда нормативов. В последние годы изучаются радиационные характеристики радона, торона и ДПР в помещениях, в грунте на разных глубинах, в атмосфере на разных высотах, исследуется динамика переноса радиоактивных газов и ДПР, изучаются всевозможные метеорологические, почвенные и другие факторы, влияющие на значения и динамику характеристик радоновых полей (см., например, работу [1]).

Для исследования естественной α-активности окружающей среды (воздуха, воды, почвы, растений) и техногенных загрязнений ее α-излучающими нуклидами кроме традиционных радиометров и дозиметров применяются также твердотельные трековые ядерные детекторы (ТТЯД) [2]. Возможность применения ТТЯД для измерений α-активности объектов окружающей среды, и в частности, для радоновых измерений отмечалась уже в 1965 г. [3]. По этой теме опубликовано множество статей, написано несколько обзоров (например, [4–6]). Частично эти вопросы рассмотрены также в монографиях [2, 7–9] и сборниках [10–12]. За прошедшие почти 20 лет после публикации обзора с участием автора [6] появилось много новых результатов по этой теме. В настоящей работе кратко рассмотрены методы и конструкции пассивных трековых устройств для радоновых исследований, опубликованные после 1999 г. вплоть до середины 2018 г. Некоторые из разработок уже были упомянуты в монографиях автора [8, 9], но для полноты картины рассмотрены (в ряде случаев более подробно) и в настоящем обзоре.

Трековые детекторы и методы подсчета треков

В обзорах [5, 6] и монографиях [8, 9] подробно рассмотрены традиционные типы и характеристики α -чувствительных ТТЯД, пригодных для радоновых измерений. Отмечено, что наиболее часто применяются: нитрат целлюлозы (LR-115, $E_{\alpha} = 0.5-4.5$ МэВ); поликарбонат (Makrofol-E, -DE, $E_{\alpha} = 0.5-3$ МэВ); а также диэтиленгликольбисаллилкарбонат (детекторы типа CR-39, $E_{\alpha} = 0.5-20$ МэВ). В качестве нового α -чувствительного детектирующего материала предложен аллилдигликолькарбонат (ADC), а также его смесь с диаллилмалеатом (DAM), позволяющая изменять порог регистрации детектора [13].

Кроме химического травления (XT) широко применяется также электрохимическое травление (ЭХТ). В последние годы для радоновых измерений предложены [14] новые параметры ЭХТ (50 Гц, 4.5– 6 кВ), которые по сравнению с ранее используемым режимом (2 кГц, 800 В) позволили использовать поликарбонатные детекторы толщиной не 0.25, а 1 мм, что более удобно потребителю, расширить энергетический диапазон регистрируемых α-частиц (15 кэВ– 4.5 МэВ вместо 0.5–2 МэВ) [15] и обеспечить более широкий диапазон плотности треков (за счет уменьшения диаметров треков).

Для новых условий ЭХТ разработан также метод уменьшения плотности фоновых треков (до 6 раз) путем промывки детекторов в подобранном растворе этилендиамина (EDA) [16].

Для сокращения времени травления, которое при ХТ и ЭХТ иногда достигает нескольких часов, кроме известного метода ультразвукового воздействия на раствор, одновременно обеспечивающего перемешивание раствора [17], предложен метод микроволнового воздействия на процесс травления при XT и ЭХТ [18]. В последнем случае травильное устройство помещается в микроволновую печь (2.45 ГГц). Под воздействием излучения происходит увеличение параметра $V_{\rm T}/V_{\rm n}$ ($V_{\rm T}$ – скорость травления трека, V_п – скорость травления поверхности детектора), приводящее к сокращению времени травления на порядок (до единиц-десятков минут); кроме того, обеспечиваются четкие границы трека на поверхности детектора, что очень существенно при автоматическом счете и измерении параметров треков.

Для подсчета треков кроме микроскопа, искровых счетчиков и различных автоматических устройств, рассмотренных в работах [8, 9], продолжаются попытки применить коммерчески доступные сканеры в сочетании с персональным компьютером (см. например, работы [19, 20]), что безусловно содействует более широкому применению ТТЯД в радоновых исследованиях. Основными трудностями для разработок в этом направлении, как отмечалось в работах [8, 9], являются либо малые размеры треков (10–20 мкм) при их хорошей контрастности, либо низкая контрастность для растравленных до больших размеров (60–80 мкм) треков.

Предложен целый ряд методов и программ, позволяющих учесть эффекты перекрытия треков и тем самым расширить измеряемый диапазон плотностей треков [21–30]. Например, в работе [24] на основе расчетов по методу Монте-Карло удалось увеличить верхний предел измерения флюенсов частиц в 3–4 раза при погрешности измерений ~10%.

Пассивные трековые радиометры для измерений концентраций изотопов радона и ДПР в воздухе и подпочвенном газе

Для правильного выбора конструкции измерительного устройства необходимо иметь информацию об отклике применяемого радиометра к радону и ДПР (трек·см⁻²·Бк⁻¹·м³·сут⁻¹) в зависимости от геометрии облучения и характера распределения ДПР внутри устройства. Математическая основа для расчета этих зависимостей была впервые создана в работе [31]. Опубликовано более 15 расчетно-теоретических работ, в которых использованы различные расчетные методики применительно к разнообразным условиям облучения для расчета откликов детекторов и элементов конструкций (см. перечень ранних работ в обзоре [6] и работы после 1999 г. [32–37]).

Стабильность отклика радиометра зависит от окружающих условий. В ряде работ исследованы зависимости отклика радиометра и эффекта фединга на трековом детекторе от процесса изготовления, ультрафиолетового облучения, присутствия кислорода, влажности и температуры воздуха (см. подробно работы [8, 9]). В последнее десятилетие значительное уменьшение чувствительности детекторов типа CR-39 из-за эффектов старения и фединга, в частности из-за температурных эффектов, отмечается в работе [38], при этом авторы объясняют его уменьшением со временем значения V_т. Эти эффекты приводят к занижению до 40% значений концентраций радона при экспозиции трековых радиометров в течение нескольких месяцев. Но те же авторы в последующей работе [39] сообщают, что при использовании детектора типа CR-39 от другого производителя влияние температурных эффектов пренебрежимо мало. В недавней работе [40] сообщается, что чувствительность детекторов типа CR-39 при экспозиции в воздухе в течение 3 и 6 мес при комнатной температуре уменьшается на 4 и 7.5% соответственно.

На значение отклика радиометра влияет ряд факторов, обусловленных физическими процессами, происходящими с радоном, ДПР и окружающими поверхностями. Это радиоактивный распад радона и ДПР, образование электрически заряженных ДПР, эффекты осаждения ДПР на поверхности («plateout»), электризация поверхностей, диффузия через трубки, мембраны, отверстия, сорбция радона на активированный уголь и т.п. Основные особенности поведения радона в измерительных устройствах описаны в литературе (см. перечень в работе [6], а также диссертацию [1]).

Представленные схематически на рис. 1 основные конструкции пассивных устройств для измерений концентраций изотопов радона и ДПР в воздухе, предложены в основном до 1999 г. Они ориентировочно (и весьма условно) разбиты на 8 групп и подробно рассмотрены в работах [6, 8, 9]. Здесь лишь отметим кратко основные подходы, поскольку они использованы и в последующих разработках.

Возможность раздельного определения радона, торона и их ДПР обусловлена различными периодами полураспада и энергиями α-распада этих радионуклидов (рис. 2).

Различные периоды полураспада радона (3.82 сут) и торона (55.6 с) открывают возможность



Рис. 1. Основные конструкции пассивных трековых устройств для измерений концентраций изотопов радона и ДПР в воздухе, предложенные в основном до 1999 г. [6] (добавлены разработанные позднее конструкции IV*d*, VII*c*, VII*c*).

их раздельной регистрации путем пропускания воздуха с этими газами через разного рода диффузионные устройства, схематично показанные на рис. 1: длинные трубки (ІІг), входные фильтры (ІІІа, б), пробки с резьбой (IVe), воздушные щели (IVd). В последние годы получил широкое распространение способ пропускания воздуха через маленькие ("булавочные") отверстия (см. ниже раздел V).



Рис. 2. Цепочки радиоактивных превращений, в которых образуются основные изотопы радона и ДПР: a – часть уранрадиевого ряда с образованием радона (²²²Rn), δ – часть ториевого ряда с образованием торона (²²⁰Rn).

Различные энергии α-распада ДПР обуславливают возможность их раздельной регистрации различными способами, также представленными на рис. 1: путем измерений плотности треков в зависимости от времени травления (VIIIа) или после пропускания α-частиц через фильтр (поглотитель, замедлитель) определенной толщины (VIIIв), измерения диаметров и длин треков (VIIIб, г). Во многих устройствах используются разностные измерения, когда один детектор измеряет суммарную плотность треков от радона и торона или от радона и его ДПР, а второй – только от радона (группа V). Для существенного (на порядки) увеличения чувствительности измерений применяются детекторные устройства с электрическим полем (группа VI) или сорбентами (групппа VII).

Ниже по каждой группе кратко рассмотрены основные устройства, предложенные и получившие распространение после 1999 г. вплоть до середины 2018 г.

I. Открытые («голые») детекторы. Вариант использования для радоновых измерений открытого («голого») детектора привлек внимание многих исследователей благодаря своей простоте и дешевизне. Были сделаны многочисленные попытки применить для этой цели детекторы типа LR-115 и CR-39 [6, 8, 9]. Однако нередко полученные результаты оказывались значительно завышенными. Например, в недавней работе [41] показано, что полученные при помощи открытых детекторов данные по радону оказались завышенными в 8.5 раза из-за присутствия в воздухе торона. В то же время в работе [42] сообщается, что, измеряя плотности треков в одновременно экспонируемых «голых» детекторах типа LR-115 и CR-39 и пользуясь разницей для этих детекторов в энергетической и угловой зависимостях эффективностей регистрации α-частиц и развитой в работе математической моделью, можно определять концентрации присоединенной и неприсоединенной к аэрозолям фракций радона, торона и их дочерних продуктов во внешнем воздухе. После 1999 г. предметоды, позволяющие использовать ложены «голые» детекторы в устройствах для прямого определения концентраций ДПР (см. ниже радиометры группы V).

II. Открытые камеры. Недостатки открытых детекторов обусловили применение детекторных устройств в виде разного рода трубок, закрытых с одной стороны (чашек, банок, коробок и т. п.), на дно которых помещен трековый детектор. После 1999 г. новых конструкций, кроме показанных на рис. 1, II и рассмотренных в работах [6, 8, 9], не предложено.

III. Радиометры ²²²**Rn с входным фильтром.** В последние 5 лет выполнено большое количество работ по исследованию параметров проницаемости фильтров, в том числе для различных условий окружающей среды (по влажности, кислотности, пыли) при экспозиции 3–4 мес [43].

Для радиометра, используемого в Радиевом институте (рис. 1, Шб) в измерительном комплексе [44], с 2005 г. применяется искровой счетчик АИСТ-4 [45] (программируемый автомат, рис. 3, б) вместо ранее применяемого прибора АИСТ-2В (полуавтомат, рис 3, а). Работа прибора обеспечивается персональным компьютером с использованием программ Windows. Разработан ряд алгоритмов: общая последовательность операций, автоматическая остановка счета, калибровочная кривая, снятие счетной характеристики, ликвидация короткого замыкания в треке. В автономном (ручном) режиме прибор управляется от кнопок на передней панели. В автоматическом режиме прибор управляется от компьютера с использованием диалоговых окон. Прибор АИСТ-4 получил широкое распространение в организациях, проводящих массовые обследования помещений на радоноопасность.

IV. Радиометры ²²²Rn с улучшенными параметрами. В этой группе предложено несколько новых разработок. Осуществлено развитие конструкции [46] (рис. 1, IV*г*) путем использования тормозящих фольг с двух сторон каждого детектора и введения поправок на разнотолщинность протравленной



Рис. 3. Искровые счетчики треков и травильное устройство, разработанные в Радиевом институте им. В. Г. Хлопина для широкомасштабных измерений: *а* – полуавтоматический счетчик АИСТ-2В (*справа*) и травильное устройство ТРАЛ-1М: сосуд для травления (*в центре*) и блок электроники (*слева*); *б* – программируемый счетчик АИСТ-4.

пленки [47]. Измерение остаточной толщины пленки с помощью микрометра можно заменить на измерение связанного с ней среднего диаметра трека в пленке [48].

В конструкции ATD-RnPD [32] вместо фильтра для отсечки аэрозолей и торона применена узкая воздушная щель, обеспечивающая в то же время более быстрое заполнение камеры радоном (рис. 1, IV*д*). Приняты меры (стенки по типу клетки Фарадея и двухмикронный майларовый фильтр на детекторе) для устранения электростатических эффектов и обеспечения равномерной плотности треков на детекторе CR-39. Использование этой камеры и аналогичной камеры ATD-TnPD позволяет определять как радон, так и торон [35].

V. Радиометры с расширенными возможностями измерений. В обзоре 1999 г. [6] констатировалось, что применение пассивных трековых радиометров для определения концентраций ДПР проблематично. В сличениях пассивных радоновых детекторов [49] было представлено 5 детекторных систем для определения концентраций ДПР. Из 30 измерений только один результат находился в удовлетворительном согласии с результатами, полученными активными методами. Но после 1999 г. в работах [33, 50] был проведен критический анализ существующих методов определения концентраций ДПР с помощью ТТЯД и предложены новые методы определения коэффициента равновесия F. В работе [50] для измерения²²²Rn использовали Makrofol в диффузионной камере с фильтром, а для определения ²¹⁸Ро + ²¹⁴Ро применяли два «голых» детектора Makrofol с тщательно подобранными условиями ЭХТ для выделения треков от ²¹⁸Ро или ²¹⁴Ро. При этом использовали разницу в энергиях α-частиц для этих изотопов (6.0 и 7.69 МэВ соответственно). В работе [33] предлагалось использовать «голый» детектор LR-115. Авторы работы расчетами по методу Монте-Карло показали, что парциальные чувствительности этого детектора к 222 Rn, 218 Ро и 214 Ро практически одинаковы. Тогда общая плотность треков на детекторе *n* (в единицах трек·м⁻²) определяется выражением

$$n = n_i (C_0 + C_1 + C_3)t,$$

где C_0 , C_1 , C_3 – OA ²²²Rn, ²¹⁸Po и ²¹⁴Po соответственно (Бк·м⁻³), t – время экспозиции. Отсюда можно получить упрощенный коэффициента равновесия

$$F_{\text{yrp}} = (C_1 + C_3)/C_0 = n/(tn_iC_0) - 1.$$

Авторы работы [33] рассчитали также и представили в виде графика величину n_i в зависимости от толщины стравленного слоя детектора. Таким образом, измерив C_0 (независимым детектором), n, толщину стравленного слоя и найдя по графику n_i , можно определить F_{ynp} . Толщину стравленного слоя можно определить непосредственно (при наличии прибора) или с помощью прилагаемой зависимости диаметра трека от толщины стравленного слоя. Переход от $F_{ynp} \kappa F$ и погрешности его определения производится также с помощью прилагаемого графика. Предложенный метод был проверен экспериментально, при этом было получено хорошее согласие для трех значений F в диапазоне от 0.13 до 0.76 (более подробно см. также работы [51, 52]).

Для измерений концентраций ²¹⁸Ро и ²¹⁴Ро может применяться метод [53] на основе сложенных стопкой детекторов LR-115 толщиной 12 мкм каждый и многошагового травления.

К радиометрам с расширенными возможностями можно отнести также радиометр Радомон (Radomon [54]). Радиометр имеет довольно сложную конструкцию, которая обеспечивает использование либо одновременно двух фильтров из полиэтилена толщиной 40 мкм и фильтровальной гидрофобной бумаги для отделения торона (на 98%), аэрозолей, влаги, либо одного бумажного фильтра для регистрации и радона, и торона. При этом могут использоваться два рабочих объема по обе стороны трекового детектора – большой и малый, при этом большой



Рис. 4. Схемы радиометров Radouet (*a*) [58] и Radopot (б) [57].

объем имеет специальную геометрию, обеспечивающую равномерную плотность треков на детекторе типа CR-39, а малый объем (щель) обусловливает в ~15 раз меньшую плотность треков, чем большой. Также можно использовать два ТЛД чипа для одновременной регистрации γ - и β -излучений. Калибровочный коэффициент для ²²²Rn составил 1 трек/(мм²·30 сут) = 84 ± 6 Бк·м⁻³.

Кроме устройств с размещением 2 детекторов (одинаковых или разных) в одной камере применяются также двухкамерные устройства (рис. 1, $V_{\mathcal{Z}}$, V_{∂}) для измерения *F*, радона и торона с применением детекторов типа как LR-115, так и CR-39 [6]. Эти конструкции получили дальнейшее развитие в работах [55, 56].

Среди двухкамерных устройств для измерений радона и торона можно отметить также японские радиометры Radopot [57] и Radouet [58] (рис. 4), которые широко использовались в различных радонтороновых обследованиях. В обоих радиометрах применяется CR-39. Оба радиометра детально исследованы в радоновой (25 м³) и тороновой (150 л) камерах с возможностью изменять скорость потока воздуха на радиометр, влажность и температуру воздуха, концентрацию внешних аэрозолей [59].

Японский вариант радиометра Radopot (рис 4, *б*) представляет собой модернизированный коммерчески доступный венгерский радиометр ²²²Rn с тем же названием. В камеру для измерения концентрации ²²²Rn воздух поступает через резьбу в заворачивающейся крышке, на дне которой укреплен трековый детектор. При диффузии через резьбу ²²⁰Rn распадается. В модернизированном варианте к радоновой камере с помощью двусторонней липкой ленты приклеивается такая же камера, но в отличие от первой имеющая четыре отверстия на боковой поверхности, закрытые фильтровальной бумагой от внешних аэрозолей. Через эти отверстия воздух, содержащий как радон, так и торон, быстро проникает в камеру. α-Частицы от распада обоих изотопов и образовавшихся внутри камеры ДПР регистрируются трековым детектором. Исходя из разницы показаний двух детекторов и результатов калибровок определяют концентрации ²²²Rn и ²²⁰Rn. Переходный коэффициент для торона составляет 1.32 ± 0.14 трек см⁻² кБк⁻¹ м³ час⁻¹, нижний предел регистрации при экспозиции 90 сут – 13 Бк·м⁻³. Эти характеристики в сочетании с невысокой ценой, малыми объемом (110 см³) и массой (20 г) делают этот радиометр очень удобным для массовых обследований помещений.

Вышеописанная конструкция была, в свою очередь, усовершенствована и получила название Radouet (рис 4, *a*). Основные принципы определения радона и торона остались прежними: две камеры, в одну из которых воздух поступает через резьбовое соединение, а во вторую – через отверстия, прикрытые легко проницаемыми фильтрами. В то же время имеется ряд конструктивных изменений: 1) камеры отделены друг от друга, что уменьшило габариты всего устройства; 2) камеры стали шире в диаметре тов, влияющих на распределение заряженных ДПР внутри камеры, стенки камер (специальная пластмасса) и фильтры отверстий (губка) выполнены электропроводными; 4) трековый детектор приклеен не к крышке камеры, а к ее дну, что исключает риск повреждения крепления при отворачивании крышки; 5) крышку можно отвернуть только специальными щипцами. При экспозиции 6 мес нижний и верхний пределы определения концентраций составляют 5 и 1000 Бк·м⁻³ для радона и 15 и 1000 Бк·м⁻³ для торона.

Значительное распространение для одновременных измерений радона и торона получила в последние годы сдвоенная камера с диффузионным барьером в виде «булавочных отверстий» (pinhole) [60], показанная на рис. 5, а («pinhole-радиометр»). Воздух попадает в верхнюю радон-тороновую камеру через фильтр, отсекающий аэрозольную компоненту. α-Частицы от радона, торона и ДПР регистрируются детектором LR-115, расположенным на перегородке между двумя камерами. В нижнюю радоновую камеру воздух попадает через диффузионный барьер в виде отверстий диаметром 1 и высотой 2 мм (pinholes). Этот барьер задерживает торон, пропуская только радон. α-Частицы радона и его ДПР регистрируются вторым детектором LR-115. Показано [61], что по чувствительности этот радиометр сравним с радиометром Radouet.

Для измерения концентраций дочерних продуктов распада радона и торона большое распространение в последние годы получил метод пропускания α-частиц через поглотители подобранной толщины. На его основе созданы прямые сенсоры дочерних продуктов (direct progeny sensors) и торона, и радона (DTPS/DRPS). Авторы работы [62] сообщают, что эти сенсоры были предложены в 2000 г. В. Жуо (Zhuo W.) с сотр., но развитие получили в последующих работах (см., например, работы [62-64]). Для регистрации ДПР торона используется поглотитель на основе алюминизированного майлара толщиной 50 мкм (рис 5, б). Расположенный за поглотителем детектор LR-115 регистрирует только α-частицы с энергией 8.78 МэВ от ²¹²Ро. Для регистрации ДПР радона применяется комбинированный фильтр из алюминизированного лавсана и нитрата целлюлозы с эффективной толщиной 37 мкм, так чтобы детектировать в основном α-частицы с энергией 7.69 МэВ от ²¹⁴Ро. Определенные трудности представляет собой калибровка детекторов (см. подробно работы [63, 64]), поскольку калибровочный коэффициент зависит от двух факторов. Первый -



Рис. 5. *а* – Радиометр радона и торона (pinhole-радиометр) [60], *б* – прямой сенсор дочерних продуктов торона (DTPS) [62].

геометрический, - представляет собой эффективность регистрации α-частиц детектором. Второй – скорость осаждения ДПР на поглотитель - зависит от скорости вентиляции, турбулентности потока воздуха, размеров частиц. Исследования [61] показали, что по чувствительности сенсор DTPS, использующий LR-115, превосходит аналогичный с детектором CR-39. Кроме непосредственно экспозиции в воздухе (как правило, около 3 мес) сенсоры DTRS/DTPS использовались также при активной прокачке воздуха через фильтр (1 л/мин) с последующей экспозицией сенсоров на фильтре (через определенную временную задержку). Применяли детекторы типа как LR-115, так CR-39 со сравнимыми по чувствительности результатами [61]. Устройство на основе DTPS и проволочной сетки может использоваться для определения присоединенной и не присоединенной к аэрозолям фракций ДПР [63, 64].

Для раздельного определения концентраций радона, торона и их ДПР применяются сочетания различных вышеописанных детекторов. В работе [63] использованы три типа детекторов. Детектор типа СR-39 в диффузионной камере измеряет только концентрацию радона. Второй детектор типа CR-39 в радиометре типа Radouet измеряет концентрации радона и торона. Третий тип детекторов DTRS/ DTPS измеряет концентрации ДПР радона и торона.

Миниатюрное четырехкамерное трековое уст-

ройство для измерений радона и торона совместно с данными долговременных измерений концентраций ²¹²Pb и ²¹²Bi позволило определить коэффициенты равновесия для торона как внутри, так и вне помещений [65].

VI. Сочетание трековых детекторов с электрическим полем. Кроме устройств, описанных в обзоре [6], для сбора с помощью электрического поля продуктов распада торона предложено применять алюминиевый поглотитель подобранной толщины для отсечки ДПР радона [66]. Авторы работы [67] усовершенствовали электростатический монитор для измерения концентрации радона во внешнем воздухе путем применения детектора типа CR-39 и сборника ДПР на основе алюминизированного майлара. При экспозиции 2 месяца чувствительность устройства составляет 0.6 Бк/м³.

VII. Сочетание трековых детекторов с сорбентами. В целях развития детекторов этой группы проведены исследования, которые позволили определить наиболее подходящие для этой цели марки угля [68]. Известный своими изобретениями в области ТТЯД Л. Томмасино с сотрудниками предложили новый тип радонового радиометра [69] - сочетание ТТЯД с тонкопленочным радиаторомсорбентом, который мог бы прикрепляться на одежду аналогично карточке-бейджу («radon-film-badge», рис. 1, VIIб). В качестве таких радиаторов-сорбентов можно использовать, в частности, некоторые твердые органические полимеры, например, Makrofol-N. Радиометры этого типа применялись для радоновых измерениях в жилищах, почве, воде и водных средах. В последнем случае диапазон измерений составлял 10–10000 Бк·л⁻¹ [70]. При использовании ТТЯД в сочетании с тонкопленочным полимерным детектором необходимо учитывать, что радоновые радиометры этого типа обнаруживают заметную чувствительность к быстрым нейтронам, и, наоборот, нейтронные детекторы с полимерными радиаторами чувствительны к радону [71].

VIII. Методы и устройства для идентификации изотопов радона и ДПР по плотности и параметрам треков. В этой группе появился ряд новых разработок. Метод α-спектрометрии применительно к изотопам радона и ДПР путем измерений диаметров треков в детекторах типа CR-39 при оптимально подобранных условиях травления (рис. 1, VIII*б*) распространен на детекторы типа LR-115 и Makrofol-DE в диапазоне энергий α-частиц 1.5–4.2 и 0.7– 3.7 МэВ соответственно [72]. Существенно, что α-частицы ДПР, осевших на детекторах вследствие эффекта plate-out, в этих энергетических диапазонах не регистрируются. Метод измерения диаметров треков использован в работе [64] для измерений концентраций ДПР радона и торона, осевших на бумажных фильтрах. Для измерений параметров треков применены новые полуавтоматические системы [73, 74].

Предложено сочетание методов, относящихся к группам VI и VIII [75]. Для разделения вклада ²¹⁴Po (продукта распада радона) от ²¹²Po (продукта распада торона) разработано устройство, в котором ДПР с помощью электрического поля осаждаются на алюминиевую фольгу толщиной 10 мкм, на обратной стороне которой закреплен коллиматор по типу пчелиных сот. α -Частицы ДПР тормозятся фольгой и 2 см воздуха в коллиматоре, после чего регистрируются детектором типа CR-39 под примерно прямыми углами. Благодаря торможению и коллимации диаметры треков α -частиц ²¹⁴Po и ²¹²Po (с учетом также яркости треков) могут быть измерены раздельно.

Альтернативным методом спектрометрии α-частиц является измерение длин полностью вытравленных треков (рис. 1, VIIIг [76]). Этот метод, в котором травитель достигает конца зоны радиационных повреждений, пригоден только для CR-39, для которого конец латентного трека практически совпадает с концом пробега α-частицы. Измерить длину вытравленного трека можно, либо облучая детекторы наклонно под фиксированным известным углом с последующим измерением проекции трека в горизонтальной плоскости, фокусируя последовательно объектив микроскопа на начало и конец трека, либо применяя специальную технику (см. перечень в работе [77]). Оба приема, естественно, гораздо сложнее и менее доступны, чем измерение диаметра (или осей) трека на поверхности детектора. Используя результаты расчетов геометрии трека в детекторе типа CR-39 [77, 78], связывающие длину вытравленного трека с энергией α-частицы в зависимости от скорости травления поверхности детектора и времени травления, необходимого для получения вытравленного трека, можно определить энергию α-частиц. Оценено, что при этом энергетическое разрешение для α-частиц с энергиями 1 и 10 МэВ составляет 17 и 0.3% соответственно вместо 100 и 10% при использовании метода измерения диаметра трека [78].

Метод герметизированной емкости для измерения радиационных характеристик твердых и жидких сред

Кроме радиометров воздушного и подпочвенного радона значительное распространение получил метод герметизированной емкости (sealed can technique) [79] для измерений объемной активности и скорости эксгаляции радона из различных образцов окружающей среды (почвы, растений, воды), а также различных материалов. В общем случае устрой-

ство представляет собой емкость объемом 300-1000 см³, нижняя часть которой заполнена исследуемым материалом; на верхней крышке укреплен трековый детектор (типа LR-115 или CR-39). Емкость герметизируется. После длительной экспозиции (недели), обработки детектора и подсчета треков с помощью математических моделей определяют ряд радиационных характеристик исследуемого образца: содержание радия (Бк·кг⁻¹), объемную активность радона (Бк·м⁻³), скорость эксгаляции радона из исследуемого материала (Бк·кг⁻¹·ч⁻¹ или Бк·м⁻²·ч⁻¹), годовую эффективную дозу (Зв·год⁻¹). Обзор такого рода устройств дан в работе [80]. В последние годы опубликован ряд работ по использованию этого метода в разных целях (см., например, работы [81] – исследование почвы и строительных материалов, [82] – исследование разных сортов табака). Для определения объемных активностей и скоростей эксгаляции проводят калибровочные измерения. Содержание радия C_{Ra} и скорость эксхаляции по площади *E*_s определяют по формулам [81]

$$C_{\text{Ra}} = NhS / \{KM[T - 1/\lambda(1 - e^{-\lambda T})]\}$$

$$E_{\text{s}} = C_{\text{Rn}}\lambda V / \{S[T + 1/\lambda(1 - e^{-\lambda T})]\},$$

где N – плотность треков на детекторе, h – расстояние от поверхности образца до детектора; S – площадь поперечного сечения образца, K – калибровочный коэффициент в единицах трек·см⁻²·сут⁻¹·Бк⁻¹·м³), M – масса образца, T – время экспозиции, λ –постоянная распада радона, V – объем воздуха над образцом, $C_{\rm Rn} = N/(TK)$ – объемная активность радона.

Пассивные устройства на основе ТТЯД, применяемые для исследований загрязнений объектов внешней среды (почвы, воды, воздуха, растений) αизлучающими радионуклидами (естественного и техногенного происхождения), как и активные методы с облучением подготовленных препаратов заряженными и нейтральными частицами с регистрацией продуктов ядерных реакций ТТЯД, детально рассмотрены в обзоре автора 2012 г. [83]. Ниже приведены краткие сведения о новых более поздних пассивных устройствах с использованием герметизированной емкости, в которых учитывается вклад активности радона.

Для непосредственного измерения концентраций урана и тория в почве могут применяться метод герметизированной емкости и устройство, разработанные в работе [84] (рис. 6). Пробы почвы или удобрений определенного веса размещают в контейнере диаметром 7 и высотой 5 см. В середину пробы помещают детекторы типа LR-115 и CR-39. На контейнер помещают перевернутый сосуд высотой 11 см, на дне которого также укрепляют детекторы типа LR-115 и CR-39. Еще один детектор типа LR-115 устанавливают на расстоянии 2–3 мм от поверхно-



Рис. 6. Схема устройства для измерения концентраций урана и тория в образцах грунта [84].

сти пробы. Верхние детекторы в воздухе регистрируют α-частицы радона и торона, выходящих из пробы в воздух, а также их ДПР (т.е. используется метод герметизированной емкости). Детекторы в грунте регистрируют α-частицы распада урана, тория и их ДПР. Детектор у поверхности пробы регистрирует α-частицы как из воздуха, так и с поверхности пробы. В специальных измерениях определяли калибровочные коэффициенты в единицах трек сут см⁻² Бк⁻¹ кг для детекторов типа LR-115 и CR-39, для каждого типа образцов, которые различались по плотности, размерам гранул и т.д. Из совокупности экспериментальных и калибровочных данных с применением развитых математических моделей [85] одновременно в пробах измеряли концентрации ²³⁸U и ²³²Th. Сравнение полученных результатов по U и Th с данными спектрометрических измерений показало хорошее согласие.

Для измерений ²²⁶Ra в воде разработан новый метод измерений в двух средах [86]. Используют сосуд, в который наливают 80 мл исследуемой воды. Над водой в сосуде в одном варианте воздух, в другом – оливковое масло. В каждую среду помещают поликарбонатные детекторы, которые выдерживают в герметично закрытом сосуде 40–48 сут. После экспозиции детекторы подвергают электрохимическому травлению и подсчету треков по методу [14]. По результатам измерений в двух средах с использованием калибровочных измерений и расчетов определяют содержание ²²⁶Ra и ²²²Rn в воде. Метод позволяет одновременно исследовать большое количество проб.

Ретроспективная радоновая дозиметрия

В качестве отдельного направления радоновых измерений с помощью ТТЯД можно отметить также ретроспективную радоновую дозиметрию на основе измерений поверхностной активности одного из долгоживущих продуктов распада радона – ²¹⁰Ро [87]. По активности этого изотопа, осевшего на гладких поверхностях (например, стеклянных) на глубине до нескольких десятков микрон, расчетным путем можно определить экспозицию по радону в воздухе помещения в предыдущий период времени [88, 89].

В работе [90] предложен новый метод одновременного определения ²²⁶Ra и ²²²Rn в воде с использованием опыта авторов по разработке метода ретроспективной радоновой дозиметрии. Измерения выполняют путем экспонирования в воде поликарбонатных детекторов, использования эффекта поглощения радона в материале детектора с последующим измерением распределения по глубине детектора числа протравленных треков и применения развитой математической модели. При экспозиции 30 сут чувствительность метода составляет 0.06 кБк/м³.

Заключение

Таким образом, после 1999 г. достигнут существенный прогресс в изучении свойств трековых детекторов, способов счета треков, разработке новых конструкций пассивных радиометров, пригодных для измерений характеристик изотопов радона и их ДПР. Разработаны математические модели, позволяющие оптимизировать конструкции измерительных устройств и определять радоновые характеристики на основе экспериментальных данных по трекам α-частиц. В различных устройствах обеспечивается определение концентраций радона и торона, прямое измерение концентраций их ДПР, определение скоростей эксгаляции радона из различных сред, определение в них концентраций U, Th и Ra. Некоторые устройства, например, радиометры радона и торона Radopot, Radouet, Pinhole, а также прямые сенсоры ДПР радона и торона DRPS/DTPS получили широкое распространение в массовых радоновых обследованиях.

Вместе с тем, конструкции предлагаемых трековых устройств и методики измерений значительно усложнились и стали более дорогими по сравнению с предыдущими, что привело к определенным трудностям при массовых обследованиях.

Список литературы

 Яковлева В. С. Методы и приборы контроля полей α-, β-, γ-излучений и радона в системе грунт–атмосфера: Дис. ... д.т.н. Томск, 2013.

- [2] Fleisher R. L., Price P. B., Walker R. M. Nuclear Tracks in Solids. Principles and Applications. Berkeley: Univ. of California Press. 1975.
- [3] Fleisher R. L., Price P. B., Walker R. M. // Ann. Rev. Nucl. Sci. 1965. Vol. 15. P. 1–28.
- [4] Benton E. V. // Proc. 11th Int. Conf. on SSNTD (Bristol, 1981) / Eds P. H. Fowler, V. M. Clapham. Oxford: Pergamon, 1982. P. 629–640.
- [5] Николаев В. А. // АНРИ. 1998. N 2. С. 16-27.
- [6] Nikolaev V. A., Ilić R. // Radiat. Meas. 1999. Vol. 30. P. 1-13.
- [7] Durrani S. A., Bull R. K. Solid State Nuclear Track Detection: Principles, Methods, and Applications. Harwell: Pergamon, 1987.
- [8] Николаев В. А. Твердотельные трековые детекторы в радиационных исследованиях. СПб.: Изд-во Политехн. унта, 2012.
- [9] Nikolaev V. A. Solid State Nuclear Track Detectors in Radiation Research. St. Petersburg: Polytechnic Univ., 2015.
- [10] Radon Measurements by Etched Track Detectors / Eds S. Durrani, R. Ilić. London: World Scientific, 1997.
- [11] Nikolaev V. A. // Radionuclides and Heavy Metals in Environment / Eds M. V. Frontasyeva et al. Kluwer, 2001. P. 349– 360.
- [12] Nuclear Track Detectors: Design, Methods, and Applications /Eds M. Sidorov, O. Ivanov. New York: Nova Science, 2009.
- [13] Tsuruta T., Nakanishi Y., Shimba H. // Radiat. Meas. 2011. Vol. 46, N 1. P. 59–63.
- [14] Sohrabi M., Ramezani V. // Radiat. Prot. Dosim. 2015. Vol. 164, N 3. P. 244–251.
- [15] Sohrabi M., Khodadadi F., Hakimi A. // Radiat. Meas. 2015. Vol. 75. P. 39–44.
- [16] Sohrabi M., Hakimi A., Soltani Z. // Radiat. Prot. Dosim. 2016. Vol. 171, N 4. P. 470–476.
- [17] Su C. S. // Radiat. Prot. Dosim. 1990. Vol. 34, N 1–4. P. 51– 54.
- [18] Tripathy S. P., Kolekar R. V., Sunil C. et al. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A. 2010. Vol. 612, N 2. P. 421–426.
- [19] Csordás A., Bátor G., Horváth D. et al. // Radiat. Meas. 2016. Vol. 87. P. 1–7.
- [20] De Cicco F., Pugliese M., Roca V., Sabbarese C. // Radiat. Prot. Dosim. 2014. Vol. 162, N 3. P. 388–393.
- [21] Aljarrah A., Al-Khaleel O. D., Al-Khateeb H. M. et al. // Radiat. Meas. 2012. Vol. 47, N 7. P. 537–540.
- [22] Simakin I. S., Vlasova I. E., Kalmykov S. N. // Radiat. Meas. 2013. Vol. 50. P. 212–217.
- [23] Khayat O., Ghergherehchi M., Afarideh H. et al. // Radiat. Meas. 2013. Vol. 50. P. 249–252.
- [24] Zylstra A. B., Frenje J. A., Séguin F. H. et al. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A. 2012. Vol. 681. P. 84–90.
- [25] Khayat O., Mohammadnia M., Afarideh H. // Proc. 26th Int. Conf. on Solid State Nuclear Track Detectors: Abstracts. Kobe, 2014. Paper CP-8.
- [26] Ghergherehchi M., Jong Seo Chai, Yoon Sang Kim, Seung eol Kim // Proc. 26th Int. Conf. on Solid State Nuclear Track Detectors: Abstracts. Kobe, 2014. Paper MP-3.
- [27] De Pin G., Dulla S., Esposito M. // Radiat. Meas. 2016. Vol. 89. P. 1–7.
- [28] Ab Azar N., Babakhani A. A., Sepanloo K. // Radiat. Meas. 2016. Vol. 91. P. 36–43.
- [29] Stanić D., Sovilj M. P., Miklavčić I., Radolić V. // Radiat. Meas. 2017. Vol. 106. P. 591–594.
- [30] Franci D., Aureli T., Cardellini F. // Radiat. Prot. Dosim. 2016. Vol. 172, N 4. P. 496–500.
- [31] Fleisher R. L., Mogro-Campero A. // Proc. 11th Int. Conf. on SSNTD (Bristol, 1981) / Eds P. H. Fowler, V. M. Clapham. Oxford: Pergamon, 1982, P. 501–512.

- [32] Calamosca M., Penzo S., Gualdrini G. // Radiat. Meas. 2003. Vol. 36, N 1–6. P. 221–224.
- [33] Yu K. N., Nikezic D., Ng F. M. F., Leung J. K. C. // Radiat. Meas. 2005. Vol. 40, N 2–6. P. 560–568.
- [34] Pressyanov D. S. // Radiat. Meas. 2011. Vol. 46, N 3. P. 357– 361.
- [35] Palacios D., Palacios F., Sajó-Bohus L. et al. // Radiat. Meas. 2008. Vol. 43, Suppl. 1. P. S435–S439.
- [36] Calamosca M., Penzo S. // Radiat. Meas. 2009. Vol. 44, N 9– 10. P. 1013–1018.
- [37] Eappen K. P. // 25th Int. Conf. on Nuclear Tracks in Solids: Abstracts. Puebla Pue (Mexico), 2011. Paper ID 050. P. 44.
- [38] Caresana M., Ferrarini M., Garlati L., Parravicini A. // Radiat. Meas. 2010. Vol. 45, N 2. P. 183–189.
- [39] Caresana M., Ferrarini M., Garlati L., Parravicini A. // Radiat. Meas. 2011. Vol. 46, N 10. P. 1160–1167.
- [40] Franci D., Aureli T., Cardellini F. // Radiat. Prot. Dosim. 2015. Vol. 167, N 4. P. 425–428.
- [41] Bajwa B. S., Singh Parminder, Singh Prabhjot et al. // Radiat. Prot. Dosim. 2016. Vol. 168, N 4. P. 553–560.
- [42] Amrane M., Oufni L., Misdaq M. A. // Radiat. Prot. Dosim. 2014. Vol. 162, N 3. P. 400–409.
- [43] Moreno V., Font L., Baixeras C. et al. // Proc. 26th Int. Conf. on Solid State Nuclear Track Detectors: Abstracts. Kobe, 2014. Paper JP-18.
- [44] Nikolaev V. A., Vorobiev I. B., Gevirz V. B. et al. // Radiat. Meas. 1995. Vol. 25, N 1–4. P. 641–642.
- [45] Denisov A. E., Nikolaev V. A., Vorobjev I. B. // Radiat. Meas. 2005. Vol. 40, N 2–6. P. 389–391.
- [46] Tommasino L., Cherousti D. E., Seidel J. L., Monnin M. // Nucl. Tracks. 1986. Vol. 12, N 1–6. P. 681–684.
- [47] Bochicchio F., Forastiere F., Farchi S. et al. // Radiat. Meas. 2003. Vol. 36, N 1–6. P. 205–210.
- [48] Caresana M., Ferrarini M. // Radiat. Meas. 2010. Vol. 45, N 8. P. 911–915.
- [49] Miles J. C. H., Algar R. A., Howarth C. B. et al. Results of the 1995 European Commission Intercomparison of Passive Radon Detectors. Brussels: European Commission, Directorate. General XII. EUR 16949 EN. 1996.
- [50] Amgarou K., Font Ll., Baixeras C. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A. 2003. Vol. 506, N 1–2. P. 186–198.
- [51] Yu K. N., Leung S. Y. Y., Nikezic D., Leung J. K. C. // Radiat. Meas. 2008. Vol. 43, Suppl. 1. P. S357–S363.
- [52] Yu K. N., Nikezic D. // Nuclear Track Detectors: Design, Methods and Applications / Eds M. Sidorov, O. Ivanov. New York: Nova Science, 2009. P. 107–131.
- [53] Nikezic D., Yu K. N. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A. 2010. Vol. 613, N 2. P. 245–250.
- [54] Csige I., Csegzi S. // Radiat. Meas. 2001. Vol. 34, N 1–6. P. 437–440.
- [55] Dwivedi K. K., Mishra R., Tripathy S. P. // Radiat. Meas. 2005. Vol. 40, N 2–6. P. 621–624.
- [56] Espinosa G., Golzarri J. I., Martinez T. et al. // Radiat. Meas. 2005. Vol. 40, N 2–6. P. 646–649.
- [57] Zhuo W., Tokonami S., Yonehara H., Yamada Y. // Rev. Sci. Instrum. 2002. Vol. 73. P. 2877–2881.
- [58] Tokonami S., Takahashi H., Kobayashi Y. et al. // Rev. Sci. Instrum. 2005. Vol. 76. P. 113505-1–113505-5.
- [59] Sorimachi A., Tokonami S., Omori Y., Ishikawa T. // Radiat. Meas. 2012. Vol. 47, N 6. P. 438–442.
- [60] Sahoo B. K., Sapra B. K., Kanse S. D. et al. // Radiat. Meas. 2013. Vol. 58. P. 52–60.

- [61] Ramola R. C., Prasad M., Rawat M. et al. // Radiat. Prot. Dosim. 2015. Vol. 167, N 1–3. P. 23–28.
- [62] Mishra R., Mayya Y. S. // Radiat. Meas. 2008. Vol. 43. P. 1408–1416.
- [63] Stojanovska Z., Zunic Z. S., Bossew P. et al. // Radiat. Prot. Dosim. 2014. Vol. 162, N 1–2. P. 152–156.
- [64] Mishra R., Rout R., Prajith R. et al. // Radiat. Prot. Dosim. 2016. Vol. 171, N 2. P. 181–186.
- [65] Harley N., Chittaporn P., Medora R., Merrill R. // Radiat. Prot. Dosim. 2010. Vol. 140, N 3. P. 357–362.
- [66] Bi L., Tschiersch J., Meisenberg O. et al. // Radiat. Prot. Dosim. 2011. Vol. 145, N 2–3. P. 288–294.
- [67] Fan D., Zhuo W., Chen B. et al. // Radiat. Prot. Dosim. 2015. Vol. 167, N 1–3. P. 121–125.
- [68] Cosma C., Van Deynse A., Poffijn A. // Radiat. Meas. 1999. Vol. 31, N 1–6. P. 351–354.
- [69] Tommasino L., Tommasino M. C., Viola P. // Radiat. Meas. 2009. Vol. 44, N 9–10. P. 719–723.
- [70] Tommasino L., Chen J., Falcomer R. et al. // Radiat. Prot. Dosim. 2017. Vol. 177, N 1–2. P. 12–15.
- [71] Tommasino L., Espinosa G. // Radiat. Meas. 2013. Vol. 50. P. 22–25.
- [72] Soares C. J., Alencar I., Guedes S. et al. // Radiat. Meas. 2013. Vol. 50. P. 246–248.
- [73] Immè G., Morelli D., Aranzulla M. et al. // Radiat. Meas. 2013. Vol. 50. P. 253–257.
- [74] Malinowska A., Jaskola M., Korman A., Szydlowski A. // Proc. 26th Int. Conf. on Solid State Nuclear Track Detectors: Abstracts. Kobe, 2014. Paper C-3.
- [75] Santos N. F., Iunes P. J., Paulo S. R. et al. // Radiat. Meas. 2010. Vol. 45, N 7. P. 823–826.
- [76] El Ghazaly M. // Radiat. Eff. Defects Solids. 2012. Vol. 167. P. 421–427.
- [77] Azooz A. A., Al-Nia'emi S. H., Al-Jubbori M. A. // Radiat. Meas. 2012. Vol. 47, N 1. P. 67–72.
- [78] Hermsdorf D., Mahmood A. // Radiat. Meas. 2013. Vol. 58. P. 101–106.
- [79] Somogyi G., Hafez A. H., Hunyadi I., Szilagly M. T. // Nucl. Track Radiat. Meas. 1986. Vol. 12. P. 701–704.
- [80] Kabrt F., Baumgartner A., Stietka M., Maringer F. J. // Radiat. Prot. Dosim. 2017. Vol. 177, N 1–2. P. 26–30.
- [81] Jagadeesha B. G., Narayana Y. // Radiochemistry. 2017. Vol. 59, N 1. P. 104–110.
- [82] Ridha A. A., Hasan H. A. // Radiochemistry. 2017. Vol. 59, N 2. P. 208–214.
- [83] Николаев В. А. // Радиохимия. 2012. Т. 54, N 1. С. 7-20.
- [84] El-Farrash A. H., Yousef H. A., Hafez A. F. // Radiat. Meas. 2012. Vol. 47, N 8. P. 644–648.
- [85] Hafez A. F., Hussein A. S., Rasheed N. M. // Appl. Radiat. Isot. 2001. Vol. 54. P. 291–298.
- [86] Sohrabi M., Khodadadi F. // Radiat. Prot. Dosim. 2015. Vol. 164, N 4. P. 537–541.
- [87] Lively R. S., Ney E. P. // Health Phys. 1987. Vol. 52, N 4. P. 411–415.
- [88] Pressyanov D. S. // Radiat. Prot. Dosim. 2012. Vol. 149, N 4. P. 464–468.
- [89] Pressyanov D., Dimitrova I., Georgiev S., Mitev K. // Radiat. Meas. 2013. Vol. 50. P. 218–222.
- [90] Dimitrova I., Mitev K., Pressyanov D. et al. // Radiat. Meas. 2011. Vol. 46, N 1. P. 119–126.