

Софийски университет “Св. Климент Охридски”
Физически факултет

ДИСЕРТАЦИЯ

за придобиване на образователната и научна степен доктор

Научна специалност: 01.03.04 Ядрена физика

Страхил Бойчев Георгиев

Ядренофизични методи за изследване на
миграцията на радиоактивни благородни газове

Научен ръководител: доц. д-р Добромир Пресиянов

Научен консултант: гл.ас. д-р Красимир Митев

София

2012

Съдържание

I	Увод	1
II	Обзор на методи за измерване на радиоактивни благородни газове	8
II.1	Методи за кумулативни измервания на радон в сгради	8
II.2	Методи за измервания на радон във води и в почвен газ	25
II.3	Методи за измерване на криптон и ксенон	36
III	Развитие на метода на дифузионните камери за кумулативни измервания на ^{222}Rn	45
III.1	Разработване и валидиране на метод за автоматично броене на следи в SSNTD	46
III.2	Калибриране на дифузионни камери и изследване зависимостта на калибровъчния коефициент от конструктивните особености на камерите	52
IV	Поликарбонатен метод за измерване на бета-радиоактивни благородни газове	59
IV.1	Прилагане на поликарбонатния метод за измерване на ^{85}Kr във вода	61
IV.2	Разработване, валидиране и приложение на теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати	64
IV.3	Разработване и валидиране на числен подход за определяне на ефективността при измерване на бета-радиоактивни благородни газове	106
V	Заклучение	123
	Приложения	130
A	Методи за ретроспективни измервания на радон	131
A.1	Метод на имплантираното в стъкло ^{210}Pb	132

A.2	Метод на обемните уловки	132
A.3	Метод на лещите за очила	133
A.4	CD/DVD метод	133
Б	Схеми на разпадане на естествени радиоактивни редове	134
	Библиография	149

Списък на по-често използваните съкращения:

MDAC	от англ. Minimum Detectable Activity Concentration – Минимална детектируема концентрация
SSNTD	от англ. Solid State Nuclear Track Detector – Твърдотелен детектор на следи
КПР	Краткоживеещи продукти на разпадане на ^{222}Rn
РБГ	Радиоактивен благороден газ

Списък на по-често използваните означения:

A	Активност
A_V	Обемна активност
D	Коефициент на дифузия
K	Коефициент на разпределение
L	Дебелина (на пластинка)
L_D	Дължина на дифузия, $L_D = \sqrt{D/\lambda}$
n	Атомна концентрация
t_d	Време на десорбция (времето изтекло след края на облъчването)
t_m	Продължителност на измерването
t_s	Време на сорбция (облъчване)
x	Координатна променлива (по направление на дебелината L на пластиката)
ε	Ефективност при измерване
λ	Константа на разпадане

Глава I

Увод

Радиоактивните благородни газове (РБГ) са радиоактивни изотопи на благородните газове с естествен или техногенен произход. Измерването им представлява интерес в области на науката като радиационна защита, ядрена енергетика, ядрена безопасност, радиоекология, науки за Земята и др.

Радонът (${}_{86}\text{Rn}$) е благороден газ, който няма стабилни изотопи. В природата съществуват три негови радиоактивни изотопа, които са част от естествените радиоактивни редове (виж Приложение Б): ${}^{219}\text{Rn}$ ($T_{1/2} = 3.96\text{s}$ [1]) от реда на ${}^{235}\text{U}$, ${}^{220}\text{Rn}$ ($T_{1/2} = 55.6\text{s}$ [1]) от реда на ${}^{232}\text{Th}$ и ${}^{222}\text{Rn}$ ($T_{1/2} = 3.82\text{d}$ [1]) от реда на ${}^{238}\text{U}$ [2]. Основна част от облъчването на човека от естествени източници се дължи на радона. Облъчването от радон се формира основно от облъчването в жилищни и работни помещения, където концентрациите му са много по-високи от тези на открито. Основните източници на радон в затворени помещения са ексхалация от почвен газ и строителни материали, постъпление от въздух от околната среда, дееманация от вода, използвана в домакинството [2]. Поради малките количества ${}^{235}\text{U}$ в природата и малкия период на полуразпадане на ${}^{219}\text{Rn}$, той не е съществен фактор за облъчването на човека [2]. Тъй като ${}^{220}\text{Rn}$ също е със сравнително малък период на полуразпадане, облъчването от него е съществено само в редки случаи на високи концентрации на ${}^{232}\text{Th}$ [2]. Основната част от облъчването на човека от радон се дължи на ${}^{222}\text{Rn}$ и краткоживеещите му продукти на разпадане (КПП), като за него е установено:

- Радон-222 е втори по тежест причинител на белодробен рак след тютюнопушенето [3];
- На ${}^{222}\text{Rn}$ се дължи над 50% от годишната ефективна доза за населението, формирана от облъчването от естествени източници [4].

Поради това Международната Комисия по Радиационна Защита (International Commission on Radiological Protection – ICRP) препоръчва на националните органи по радиационна защита да въведат прагови нива на концентрациите на радон в жилища и на работни места, над които да се вземат задължителни мерки за снижаване на концентрациите на радон [5]. Въвеждането на такива нива за жилищни сгради е препоръчано и от Комисията на Европейската Общност (Commission of the European Communities – СЕС) [6]. Препоръките са възприети в много европейски страни и са въведени задължителни нива на намеса [7, 8, 9]. В България също съществуват такива нива, но те са само с препоръчителен характер [10]. С оглед спазването на тези норми, както и предприемането на адекватни мерки в случаите на високи концентрации на ^{222}Rn , е необходимо да се правят измервания не само в сградите, но и в почвен газ и води, които са едни от основните източници на ^{222}Rn . Измерванията в почвен газ са важни и при планиране на строителство, което би позволило вземане на мерки по време на строителството (ако е необходимо). Концентрациите на ^{222}Rn в питейни води също са обект на контрол в някои страни [7, 11, 12]. Посредством измервания на концентрациите на ^{222}Rn в питейни води, може да се определи съдържанието на ^{226}Ra [13], което също подлежи на контрол [11, 14]. Измерванията на ^{222}Rn в почвен газ и води представляват интерес и в областта на радиоокологията. В България например, това е свързано с оценка замърсяванията, възникнали по време на уранодобива, с оценка на мерките за ограничаване на замърсяванията и оценка на мерките при ликвидиране на уранодобивната промишленост. Измерванията на ^{222}Rn в почвен газ и води намират приложение също и при изследвания на тектониката на Земята, датиране на подпочвени води, изследване на процесите на взаимодействие между подпочвени и повърхностни води и др.

При измерването на концентрациите на ^{222}Rn в сгради за целите на радиационната защита, основен проблем са големите вариации в концентрацията му, дължащи се на разнообразни причини като метеорологични условия (температура, атмосферно налягане, валежи), проветряване на помещенията и др. Тези вариации могат да достигнат няколко порядъка дори в рамките на едно денонощие. По тази причина, при оценка на облъчването на човека от ^{222}Rn (наричан отгук нататък ”радон”), представителни са кумулативните измервания – интегрални измервания, при които се определя средната концентрация за дълъг период от време. Най-широко използваният метод за кумулативни измервания на радон в жилища е методът на дифузионните камери с твърдотелни детектори на следи [3]. При този метод, ^{222}Rn по дифузионен път постъпва в обема на затворена камера, в която се намира и твърдотелен детектор на следи. При разпадането си в обема на камерата, ^{222}Rn и част от генерираните КПП (^{218}Po и ^{214}Po) търпят α -разпадане и формират следи

в детектора. След края на облъчването следите се обработват химически и се преброяват. Плътноста на следите (брой следи на единица площ) е пропорционален на интегрираната по времето на облъчване обемна активност на радона. Методът на дифузионните камери е широко приложим и за кратковременни измервания в почвен газ (поради високите концентрации на радон в почвен газ и бързото насищане на твърдотелния детектор на следи, измерванията в почвен газ могат да продължат само няколко дни). Въпреки че, методът се прилага от десетилетия, едно от предизвикателствата пред него е бързото и надеждно броене на следите. Най-простият и надежден метод е визуалното броене с оптичен микроскоп, но същевременно той е и най-натоварващ за оператора. Затова, използвайки за сравнение визуалното броене, са разработени множество методи за полуавтоматично и автоматично броене. Методът на дифузионните камери традиционно се използва (повече от 15 години) в лаборатория ”Дозиметрия и лъчезащита”¹ при Физически факултет на СУ ”Св. Климент Охридски”. Затова първата цел на настоящата дисертация е:

Цел 1. Развитие на метода на дифузионните камери за кумулативни измервания на ^{222}Rn . Това включва следните задачи:

- Разработване на нов алгоритъм за автоматично броене на следите;
- Сравняването му с утвърдения метод за визуално броене;
- Разработване и сравнение между различни видове камери;
- Разработване на процедура за калибриране на дифузионните камери при автоматично броене на следите с новоразработения алгоритъм.

Друг метод за прецизни измервания на ^{222}Rn е предложеният наскоро от Пресиянов и съавтори поликарбонатен (компакт-дисков CD) метод за ретроспективни (измервания назад във времето), кумулативни измервания [15]. Той се основава на високата способност на някои поликарбонати (какъвто е материала на CD/DVD) да абсорбират РБГ, съчетана със свойството на тези поликарбонати на твърдотелни детектори на следи. След като бъде абсорбиран в поликарбоната, ^{222}Rn и КПП формират следи в поликарбоната. По-късно беше показано че, освен за кумулативни измервания, този метод е приложим и за измервания във води и почвен газ [16, 17, 13]. При тези измервания, методът може да бъде приложен или подобно на случая във въздух – използвайки свойството на поликарбоната на детектор на следи, или да бъде измерен сигналът от поликарбоната, дължащ се на бета- или гама-лъчението, дължащо се на разпадането на КПП на ^{222}Rn (^{214}Bi и ^{214}Pb).

¹Лабораторията, към която дисертантът е зачислен на редовна докторантура и е извършил работата по настоящата дисертация.

Криптон (${}_{36}\text{Kr}$) и ксенон (${}_{54}\text{Xe}$) са благородни газове, срещащи се в природата основно като смес от няколко стабилни изотопа: ${}^{78}\text{Kr}$, ${}^{80}\text{Kr}$, ${}^{82}\text{Kr}$, ${}^{83}\text{Kr}$, ${}^{84}\text{Kr}$, ${}^{86}\text{Kr}$ [18] и ${}^{124}\text{Xe}$, ${}^{126}\text{Xe}$, ${}^{128}\text{Xe}$, ${}^{129}\text{Xe}$, ${}^{130}\text{Xe}$, ${}^{131}\text{Xe}$, ${}^{132}\text{Xe}$, ${}^{134}\text{Xe}$, ${}^{136}\text{Xe}$ [1]. Срещат се и радиоактивни изотопи – основно продукти на ядрено делене с техногенен произход. Източници на тези изотопи са заводите за производство на радиофармацевтици, атомните електроцентрали (АЕЦ), заводите за преработка на отработено ядрено гориво и ядрени експлозии и аварии [19]. Радиоактивните изотопи от основен интерес са ${}^{85}\text{Kr}$ и ${}^{133}\text{Xe}$. В ядрената енергетика те се използват при контрола на работата на АЕЦ, като по количеството и съотношението между изотопите на РБГ може да се оцени състоянието на горивото или да се идентифицират разхерметизирани горивни елементи [20]. В ядрената безопасност тези РБГ се използват при контрола на изхвърлянията от ядрените съоръжения, при контрол на спазване на забраната на ядрените опити и при оценка на разпространението на активност при ядрени аварии. Различните случаи носят различен характерен ”подпис” (съотношение между изотопите на РБГ), по който могат да бъдат разграничавани [21, 22]. В науките за Земята ${}^{85}\text{Kr}$ и ${}^{133}\text{Xe}$ намират приложение при разработване и валидиране на атмосферни модели [21]. Като инертни газове те са подходящи, тъй като са химически неактивни и позволяват да бъдат проследявани само физическите процеси. При разработване и валидиране на моделите за източници се използват ядрените съоръжения, при които има строг контрол на изхвърлянията. От своя страна, моделите позволяват при установяване на нерегламентирано изхвърляне или авария, съответно откриване на източника или оценка на замърсяването. Тъй като след 40те години на ХХ век, когато започва ядрената ера, в атмосферата се натрупва достатъчно количество ${}^{85}\text{Kr}$, той намира приложение и при датироване на подпочвени води и изследване на взаимодействието океан–атмосфера.

Всяка от тези области се характеризира със специфични, сложни, скъпи и дори безалтернативни методи за измерване на активността на ${}^{85}\text{Kr}$ и ${}^{133}\text{Xe}$ във въздушна и водна среда. Липсата на алтернативни методи беше подчертана при настъпилата наскоро авария в АЕЦ-Фукушима. При докладвани повишени концентрации на ${}^{131}\text{I}$ и ${}^{137}\text{Cs}$ от страни в цялото северно полукълбо [23], до момента само две лаборатории от Северна Америка са докладвали повишена концентрация на ${}^{133}\text{Xe}$ [24, 25]. Няма данни дори и в близост до аварията. Според авторите на [24], международна станция за контрол на изхвърлянията, намираща се на 300km от авариралата централа, е регистрирала наличие на ${}^{133}\text{Xe}$, но поради много високите концентрации на ${}^{133}\text{Xe}$ в близост до аварията, от една страна и предназначението на станцията за измерване на ниски активности, от друга, точни данни за концентрацията на ${}^{133}\text{Xe}$ няма.

Наскоро, с водещото участие на сътрудници на лаборатория ”Дозиметрия и

Лъчезащита”, беше показано че поликарбонатният метод, първоначално предложен за измервания на радон (виж по-горе), е приложим и за измервания на ^{85}Kr и ^{133}Xe във въздух [26]. При прилагане на метода за измерване на ^{85}Kr и ^{133}Xe , отново се използва способността на поликарбоната да абсорбира РБГ. След като поликарбонатът абсорбира ^{85}Kr и ^{133}Xe , с подходяща ядрено-физична апаратура, се регистрира бета- или гама-лъчението, дължащо се на абсорбирания РБГ (^{85}Kr и ^{133}Xe са β - и γ -лъчители). Поради пилотният характер на изследванията в [26], те само показват възможността РБГ да бъдат измервани чрез абсорбция в поликарбонати. За да бъде разкрит пълният потенциал на метода, е необходимо детайлното изучаване на процеса на абсорбция на РБГ в поликарбоната, условията, от които зависи този процес, както и условията, от които зависи измереният сигнал. Затова втората цел на дисертацията е:

Цел 2. Разработване на поликарбонатния метод за измерване на бета-радиоактивни благородни газове (бета-РБГ). Това включва следните задачи:

- Изследване на приложимостта на метода и за други РБГ (освен радон) разтворени във вода;
- Разработване и валидиране на модел, описващ процесите на транспорт на РБГ в поликарбонати;
- Изследване на възможностите на модела – определяне на величини от практически интерес, оптимизиране на експерименти по облъчване и т.н.;
- Разработване и валидиране на числен подход за определяне на ефективността при измерване на бета-радиоактивни благородни газове.

Настоящата дисертация включва пет глави. В глава II е направен обзор на някои от областите, в които намират приложение измерванията на РБГ, както и на характеристиките за всяка от областите методи. Първата част на обзора (секция II.1) е посветена на методите за кумулативни измервания на радон в жилища. Основно внимание е обърнато на най-широко използвания клас методи – методите използващи устройства с твърдотелен детектор на следи и дифузионна мембрана. Като част от тези методи са разгледани и методите за броене на следи. Като най-подходящ, аргументирано е определен, методът на дифузионните камери, а от методите за броене – методът чрез сканиране и автоматично броене на следите на полученото изображение с компютърен алгоритъм. Накратко са описани и методите за ретроспективни измервания, като е показана приложимостта на CD метода както за ретроспективни, така и за проспективни измервания.

Във втората част на обзора (секция II.2) са разгледани областите на интерес и методите за измерване на радон във води и почвен газ. Показани са предимствата и недостатъците на методите. Показана е приложимостта на поликарбонатния метод във всички разгледани области на приложение, като в някои от случаите предимствата му са безспорни.

В третата част на обзора (секция II.3) са представени областите, в които интерес представляват измерванията на $^{85}\text{Kг}$ и ^{133}Xe . Особеност на методите за измерване на тези РБГ е, че те са специфични за конкретните области. В паралел с всеки метод е разгледан и поликарбонатния метод, като алтернативен или съпътстващ метод.

В глава III са представени резултатите от работата, извършена по развитие на метода на дифузионните камери. Представен е и е валидиран, предложеният от нас, нов метод за автоматично броене на следи в детектори Kodak-Pathe LR-115/II (твърдотелни детектори на следи (SSNTD²), използвани от нас при прилагане на метода на дифузионните камери). Методът се основава на сканиране на детекторите с компютърен скенер и броене на следите със специално разработен компютърен алгоритъм. Демонстрирана е приложимостта на този метод за броене на следи и в други SSNTD. Разработен е метод за калибриране на дифузионни камери, при броене на следите с новоразработения алгоритъм. Калибрирани са два типа дифузионни камери – пластмасови (традиционно използвани в лабораторията) и метални. Тъй като това са първите ни опити с металните камери, разгледани са различни конструкции и са сравнени както по между си, така и с пластмасовите камери. Изтъкнати са предимствата на металните камери. Определени са калибровъчните коефициенти за двата типа камери при автоматично и визуално броене. Резултатите са сравнени и коментирани.

В глава IV е представена работата ни по разработване на поликарбонатния метод във варианта му за измерване на бета-РБГ. Първо е показана възможността за измерване на $^{85}\text{Kг}$ във води. Оценена е минималната детектируема концентрация на $^{85}\text{Kг}$ при конкретните условия на измерване. Разработен е и е валидиран теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати, поставени в РБГ-съдържаща среда. На базата на теоретичния модел са разработени методи за определяне на коефициента на разпределение на РБГ между дадената среда и поликарбоната и за определяне на дължината на дифузия (респ. коефициента на дифузия) на РБГ в поликарбоната. Представени са резултати от международно сравнение по определяне на коефициента на дифузия в различни полимерни материали. Успешното участие в това сравнение показва приложимостта на модела при описание на процесите на транспорт на РБГ и в други

²От английски Solid State Nuclear Track Detector (SSNTD) – твърдотелен детектор на следи.

полимерни материали. На базата на теоретичния модел е разработен компютърен код, позволяващ прецизното пресмятане на абсорбираната активност и разпределението ѝ в поликарбонати като функция на условията на облъчване. Представено е изследване на точността при пресмятанията с разработения код. Демонстрирана е възможността на кода за предварително оптимизиране на експерименти, както и за оценка на границите на приложимост на метода. Разработен е и е валидиран числен подход за оценка на ефективността при измерване на бета-РБГ чрез абсорбция в поликарбонати. Демонстрирана е възможността на подхода за планиране и оптимизиране на експерименти по измерване на бета-РБГ. Предложен е метод за оценка на влиянието на алфа-лъчители върху измерването на бета-РБГ в случаите, когато измервателната апаратура не позволява разграничаване между алфа- и бета-частици. Приложимостта на този метод е демонстрирана в конкретен случай на измерване на радон, чрез абсорбция в поликарбонатна пластинка и последващо общо бета-броене с ГМ-брояч с тънък входящ прозорец. Предложен е подход за забавяне на процеса на десорбция на РБГ от поликарбонати чрез замразяване в течен азот. Представена е експериментална проверка на подхода при измерване на радон, като при него замразяването спира процеса на десорбция.

Глава II

Обзор на методи за измерване на радиоактивни благородни газове

Разнообразието от области на науката, в които измерването на РБГ представлява интерес, обуславя и голямо разнообразие от методи с различна чувствителност и област на приложение. Поради това, този обзор ще засегне част от методите за измерване на РБГ, прилагани в области, в които намират или биха могли да намерят приложение методите разработени в Глава III (метод на дифузионните камери) и Глава IV (поликарбонатен метод) на настоящата дисертация.

II.1 Методи за кумулативни измервания на радон в сгради

В областта на радиационната защита измерванията на радон представляват интерес поради голямата му тежест като причинител на белодробен рак и широкото му разпространение в природата. Основното облъчване на човека от радон става в затворени помещения (жилища, работни помещения), където концентрациите на радон са няколко пъти по-високи отколкото на открито и където човек прекарва по-голямата част от денонощието. Поради това оценката на риска от облъчване от радон се прави на базата на концентрациите на радон в тези помещения. Концентрациите на радон търпят денонощни, сезонни и годишни вариации, като дори в рамките на денонощието тези вариации могат да достигнат 2 – 3 порядъка. Влияние върху тези вариации оказват различни фактори: метеорологични условия (като валежи, температура, вятър и т.н.), начин на живот (проветряване на помещенията, отопляване и др.) както и други условия, свързани с миграцията на радон

от мястото където е генериран (почвен газ, подпочвени и питейни води, строителни материали) до помещението, обект на изследване. Тези вариации не могат да бъдат описани просто, поради това представителни при оценка на риска са т. нар. кумулативни измервания – т.е. интегрални измервания за продължителен период от време. Световната здравна организация (СЗО) препоръчва тези измервания да са за период между три месеца и една година, т.к. кратковременните измервания (за време по-малко от 3 месеца) не са надеждни при големи вариации на концентрациите на радон [3]. В таблица II.1 са систематизирани няколко вида устройства за измерване на радон, използвани в радонови проучвания в партньорство със СЗО [3] (с изключение на CD/DVD, за които ще стане дума по-нататък в тази секция). Това всъщност са и най-често използваните устройства за тези цели и те ще бъдат по-подробно разгледани в тази секция.

Таблица II.1: Устройства за измерване на радон и някои техни характеристики. Част от таблицата е превод на таблица 6 от библ. изт. [3]

Детектор	Пасивен/ Активен	Неопределеност* (%)	Продължителност на измерването	Цена
Твърдотелен детектор на следи от α -частици	Пасивен	10-25	1-12 месеца	ниска
Активен въглен	Пасивен	10-30	1-7 дни	ниска
Електретен детектор	Пасивен	8-15	5 дни - 1 година	средна
Електронни интегриращи устройства	Активен	~ 25	2 дни - година(и)	средна
Монитори за непрекъснати измервания	Активен	~ 10	1 час - година(и)	висока
**CD/DVD използвани или нови	Пасивен	20	година(и)	ниска

* Неопределеността е оценена при оптимално облъчване и при $\sim 200 \text{ Bq/m}^3$

** Ретроспективен метод. За оценката на неопределеността виж [27]

Представените в таблица II.1 устройства са за т. нар. проспективни измерва-

ния на радон (с изкл. на CD/DVD). Характерно за тях е, че дават оценка за средната за времето за измерване концентрация на радон¹, респективно за риска за обитателите на помещението към момента на измерване. В този смисъл, резултатът от проспективните измервания е характеристика на помещението в момента и може да служи като основа за решение дали трябва да се предприемат мерки за снижаване на концентрациите на радон. Това решение се взема на базата нормативни документи, които регламентират нива на допустимите концентрации на радон, над които рискът става неприемлив (съгласно принципът ALARA). За да бъдат поставени тези нива, необходимо е да се знае връзката² между концентрация на радон и вероятността за развитие на белодробен рак. Латентния период за развитие на белодробен рак е между 5 и няколко десетки години – време, в което човек може да смени или ремонтира жилището си, с което съществено да измени концентрациите на радон, на който е изложен. Поради това на база проспективни измервания не може да се свърже развитието на белодробен рак в настоящия момент с облъчването от радон [27]. За да се направи тази връзка, трябва да бъде направена оценка на концентрациите на радон, на които даденият човек е бил изложен в рамките на характерното време за развитие на това заболяване. Методите, които позволяват измерване на радон назад във времето се наричат ретроспективни. По правило, при тези методи за анализ и оценка на концентрацията на радон се използват "обекти-свидетели" – предмети, които са били дълго време с човека, за който се оценява риска – например компакт дискове, някои мебели, рамки за снимки, очила. По този начин могат да бъдат оценени концентрациите на радон назад във времето, на които е бил изложен даденият човек. Методите за ретроспективни измервания³ не са обект на настоящата дисертация и те няма да бъдат разглеждани (кратък преглед на някои методи за ретроспективни измервания е направен в приложение А). Внимание ще бъде обърнато само на един от тях, който е приложим и за проспективни измервания – CD/DVD метод (последния ред в таблица II.1).

II.1.1 Устройства с твърдотелен детектор на следи с дифузионна бариера

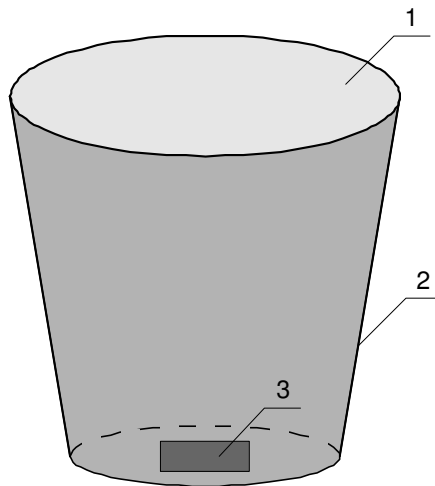
Тези устройства са, може би, най-използваните и най-разнообразни устройства за проспективни, кумулативни измервания на радон. Това се дължи на ниската им цена, простотата

¹Мониторите за непрекъснати измервания освен средната за времето на облъчване концентрация на радон, дават и изменението на концентрацията с времето.

²Съществуването на такава връзка е показано [3], но точното ѝ количествено описание е обект на множество епидемиологични проучвания. Преглед на такива проучвания е представен в [27].

³Подробен обзор на ретроспективните методи за измерване на радон е направен в [27].

и надеждността при използване, както и диапазона от активности и времена на измерване. Най-общо тези устройства се състоят от обем с дифузионна бариера, в който е поставен твърдотелен детектор на следи (SSNTD – Solid State Nuclear Track Detector), чувствителен към α -частици. В повечето случаи⁴ обемът представлява съд (дифузионна камера) с форма на цилиндър или пресечен конус на който едната основа е заменена с дифузионна мембрана, а на другата основа (условно наречена дъно) е прикрепен SSNTD (фигура II.1). Радон-222 дифундира в обема на камерата, разпада се и α -частиците, получени при разпадането на него и краткоживеещите му продукти на разпадане (КПП), формират следи в SSNTD. След подходяща химическа обработка следите се увеличават, преброяват и по плътността им (брой следи на единица площ) се оценява концентрацията на радон.



Фигура II.1: Устройство на дифузионна камера. 1. Дифузионна мембрана – например полиетилен или филтърна фартия; 2. Съд с форма на пресечен конус (или цилиндър); 3. SSNTD – най-често използвани са Kodak-Pathe LR115 II, CR-39, Makrofol.

II.1.1.1 Дифузионна мембрана

Дифузионна мембрана (напр. полиетиленово фолио) има за цел по дифузионен път да пропусне в обема на дифузионната камера само ^{222}Rn като същевременно задържи дъщерните му продукти както и ^{220}Rn и неговите дъщерни продукти. Елиминирането на дъщерните продукти на ^{222}Rn е необходимо т.к. във въздуха в помещението радон и дъщерните му продукти не са в равновесие. Това се дължи на факта, че радонът е инертен газ и свободно дифундира в помещението, а дъщерните му продукти са метали и се отлагат по повърхностите в помещението или прилепват по аерозоли, които също се отлагат. В следствие на това съотношението на радон и дъщерните му продукти във въздуха в стаята не е постоянно и зависи сложно от много фактори (напр. запрашеност, проветряване, влажност и т.н.). Влиянието на ^{220}Rn (ако присъства във въздуха в помещението)

⁴Такова е устройството на дифузионните камери, обект на изследване в настоящата дисертация (виж Глава III).

върху измерването на ^{222}Rn се елиминира също от дифузионната мембрана: поради много по-малкия период на полуразпадане (респ. по-голяма константа на разпадане λ) на ^{220}Rn спрямо ^{222}Rn (виж Приложение Б), ^{220}Rn има много по-малка дължина на дифузия L_D спрямо ^{222}Rn ($L_D = \sqrt{D/\lambda}$, D е коефициентът на дифузия на Rn за съответния материал). Тогава при избор на подходяща мембрана – с дебелина няколко пъти по-голяма от $L_D(^{220}\text{Rn})$, но по-малка от $L_D(^{222}\text{Rn})$, в обема на камерата дифузионно ще навлиза само ^{222}Rn .

II.1.1.2 Твърдотелен детектор на следи

След като попадне в обема на камерата ^{222}Rn се разпада и генерира краткоживеещи продукти на разпадане (КПП). Равновесието между ^{222}Rn и КПП и разпределението им в обема на камерата не се влияе или слабо се влияе от външни фактори [3]. Тъй като ^{222}Rn и някои КПП (^{218}Po и ^{214}Po виж Приложение Б) търпят α -разпадане, излъчените от тях α -частици формират следи в SSNTD (виж по-нататък в тази секция). Плътността на следите (брой следи на единица площ) е пропорционална на интегрираната по времето на облъчване обемна активност на ^{222}Rn . След химическо ецване следите се преброяват и се определя плътността на следите. Най-често използваните детектори са:

- Kodak-Pathe LR115 II (за краткост LR115) – 12 микронен нитроцелулозен слой върху 100 микронна целулозна подложка;
- Makrofol⁵ – поликарбонатен детектор, синтезиран на базата на бисфенол-А;
- CR-39, срещан още като PADC или ADC (Поли Алил Дигликол Карбонат).

II.1.1.3 Ецване на следите

При преминаване на тежки заредени частици (протони, α -частици, фрагменти на делене и др.) през някои материали⁶ (материали със свойства на SSNTD), поради големите йонизационни загуби на тези частици, по продължение на траекторията си те формират трайни дефекти в материала. Размерите на тези следи са от порядъка на десетки нанометри. Първоначално те са наблюдавани под електронен микроскоп [28], но това прави SSNTD неприложими извън специализираните научни лаборатории. Затова, преди да бъдат наблюдавани следите, детекторите се ецват с подходящ химичен разтвор [28], характерен за конкретния материал и имащ свойството да отнема (разтваря) материала с

⁵Makrofol[®] е запазена марка на Bayer, Германия.

⁶Такива материали могат да бъдат монокристали като слюда, AgBr, аморфни твърдотелни материали като неорганични стъкла или полимери [28].

по-голяма скорост по продължение на следата. При това следите придобиват характерна конична форма, размерът им се увеличава многократно (от няколко микрона до 10-20 микрона) и могат да бъдат наблюдавани с оптичен микроскоп. Някои детектори позволяват следите да бъдат допълнително увеличени до размери от порядъка на 100 микрона. Това се постига чрез прилагане на електрично поле по време на химичното ецване [29, 30] (електрохимично ецване) или след химичното ецване [31, 32]. Механизмите на формиране и ецване на следите не са обект на настоящата дисертация. Подробни изследвания върху формирането на следи от различни частици в различни материали са публикувани например в [28], а върху процеса на ецване в [33].

II.1.1.4 Броене на следите

SSNTD се използват в много области на ядрената наука за регистрация на тежки заредени частици, регистрация на неутрони чрез откатни протони или ядрени реакции. По тази причина са разработени множество методи за броене на следи:

Първият и най-прост метод е *визуалното броене*. При него следите се броят визуално от оператор, с помощта на оптичен микроскоп. При броенето⁷ първо, в зависимост от плътността на следите, операторът подбира подходящо увеличение на микроскопа, така че от една страна да е комфортно за броене (не повече от 40-50 следи на поле), а от друга – да има достатъчно следи на поле и размерът на полето да е по-голям от характерния размер на следите. След това операторът преброява следите N_i на няколко зрителни полета, така че да постигне предварително зададена неопределеност на резултата, като броят на полетата е поне $m=10$, за да се провери дали следите са хомогенно разпределени. След това следите се осредняват $\bar{N} = \sum N_i/m$ и се определя плътността на следите n върху детектора като средният брой следи се разделя на площта S на зрителното поле $n = \bar{N}/S$. Това е субективен, бавен и натоварващ оператора метод. Въпреки това и въпреки наличието на алгоритми за бързо, автоматично броене, методът се използва включително и при разработване и валидиране на такива алгоритми, поради надеждността при броене от добре тренирани оператори.

Друг алгоритъм, подобен на предходния е *визуално броене на проектирано изображение* [32, 34]. При него детекторът се поставя в прожекционен апарат и се проектира. Следите отново се броят от оператор. Очевидно, този метод не подобрява качествено скоростта на броене и единственото му предимство е по-малкото натоварване на зрението

⁷Описаната процедура за визуално броене е процедура, която се използва в лаб. Дозиметрия и лъчезащита към Физически факултет на СУ "Св. Кл. Охридски", където дисертантът е бил зачислен и работил като докторант.

на оператора.

Качествено нов метод за броене е *автоматично броене със сканиращ оптичен микроскоп* [35]. При този метод операторът е заменен от система за автоматично броене. Комерсиална система от оптичен микроскоп със система за стъпково движение във фокусната равнина (равнината на детектора) сканира повърхността на детектора със стъпка по-малка от характерния размер на следите. Оптичният сигнал се подава на фотометър и дискриминатор, които в зависимост от интензитета на даденото поле изработват сигнал "0" или "1". Това съответства на равна (огледална) или неравна (следа) повърхност на детектора. На всяка стъпка на микроскопа този сигнал се записва в матрица, съответстваща на повърхността на SSNTD. След това съседните елементи със стойност "1" в матрицата се групират в "следи" и се преброяват. Предимство на този метод е, че не натоварва зрението на оператора и елиминира субективния елемент при броенето. Въпреки това, той има няколко съществени недостатъка спрямо други автоматични методи: не ускорява съществено процедурата по броене т.к. обикновено се сканират повече от едно поле, което изисква префокусиране; изисква голям контраст на следите спрямо повърхността на детектора; изисква скъпа специализирана апаратура.

Комерсиални системи с оптичен микроскоп с камера и алгоритъм за броене [36]. Поради необходимостта от системи за броене на следи започва и комерсиално производство на такива системи (напр.: Leica-Quantimet [36, 37], Leitz-TAS [36]). При тези системи области от детектора се снимат с помощта на система от оптичен микроскоп куплиран с аналогова камера или CCD-матрица. Следите в получените изображения се преброяват със специално разработен алгоритъм. Предимствата на тези системи са, че те са напълно автоматизирани (независими от оператор); позволяват автоматична смяна на детектора; подходящи са за обработка на много детектори. Недостатъците са: по правило високата цена, т.к. освен самата система цената включва поддръжка и софтуер свързан с работата на системата; работа на принципа на "черната кутия" – поради комерсиалния характер на тези системи, не винаги има информация за работата на алгоритмите, което прави тези системи много неподходящи за научна работа.

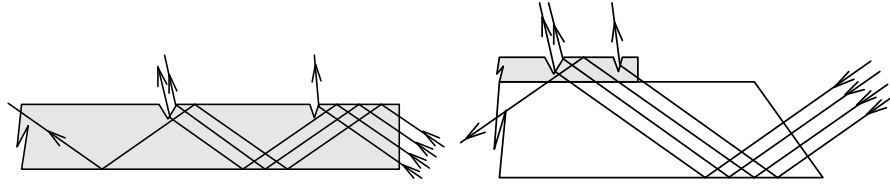
Искрово броене (spark counting) [32, 38, 36, 39]. При този метод е необходимо детекторът да е тънък. Той се притиска между два плоски електрода, единият от които е тънко алуминиево фолио. На така получения кондензатор през RC-група се подава постоянно високо напрежение. На място, където има следа, прескача искра, при което кондензаторът се разрежда и в системата протича ток, като същевременно искрата изпарява алуминиевото фолио в областта на следата. Постоянното напрежение отново зарежда кондензатора и той пробива в областта на следваща следа. Така процесът продължава докато

не остане следа, срещу която алуминиевото фолио не е изпарено. Искрите (пробивите в кондензатора) могат да бъдат броени докато тече процеса, като броят им е равен на броя на следите. Следите върху алуминиевото фолио също могат да бъдат преброени (чрез някой от другите методи), т.к. алуминиевото фолио представлява "отпечатък" на детектора. Този метод е прост, бърз и евтин и може да бъде прилаган за детектори с големи площи. Недостатъците му са: зависи от процеса на ецване (остатъчната повърхност на детектора), натиска върху детектора, приложеното високо напрежение, дебелината на алуминиевото фолио, евентуално замърсяване на повърхностите.

Интегралните методи [39] се базират на промяна в пропускливостта на детекторите в областта на следите. При тези методи не се определя директно броя на следите, а интегралната им площ. При предположение, че следите са с приблизително еднаква площ, разпределени около някаква средна стойност, броят им може да бъде оценен на базата на интегралната площ. *Фотометричен метод* [40, 39]: Например при Kodak-Pathe LR115 II следите след проявяване представляват бели петна на червен фон. Ако детекторът се просвети със синя или зелена светлина, то тя ще преминава през детектора само в областите на следите. Интензитета на преминалата светлина ще нараства с нарастването на плътността на следите. *Метод на пропускане на частици* [34, 39]: Ако детекторът се облъчи с частици с пробег малко по-малък от дебелината му, то, т.к. в областта на следите детекторът е по-тънък, те ще успяват да преминат само в областите на следите. *Метод с електролитна клетка* [41, 39]: Ако неецван детектор се постави като разделителна мембрана в електролитна клетка с ецващ разтвор, по промяната в съпротивлението може да се съди както за плътността на следите така и за скоростта на ецване на детектора и скоростта на ецване на следите.

Метод на нарушеното пълно вътрешно отражение [42, 43] Първоначално методът е предложен за детектори CR-39 [42]. При него, колимиран сноп светлина от кварц-халогенна лампа се въвежда през ръб на детектора под такъв ъгъл, че светлината търпи пълно вътрешно отражение (ПВО) от повърхността на детектора (фигура II.2). В областта на следата условието за ПВО се нарушава, при което следите се появяват като ярки светли петна върху тъмен фон. Следите се преброяват с помощта на видеокамера куплирана към оптичен микроскоп и система за обработване на изображения. По-късно, методът е развит и модифициран [43] за приложение за детектори Kodak-Pathe LR115 II. Тъй като Kodak детекторите са тънки, за да може да се въведе светлината под такъв ъгъл, че да търпи ПВО, детекторът се куплира с призма с помощта на имерсионно масло. За светлинен източник е използван лазер, като лазерният лъч се разделя на две – единият се въвежда в призмата, а другият се използва за обратна връзка и контрол на интензитета.

Плътноста на следите се оценява фотометрично, като авторите отбелязват, че могат да бъдат броени и визуално или със система за обработване на изображения. Предимство на метода, отбелязано в [43] е силното потискане на фона на детектора от дефекти.



Фигура II.2: Успореден сноп светлина се въвежда през страничния ръб на детектора (ляво – за случая на CR-39 [42]) или през призма (дясно – за случая на LR115 [43]), под такъв ъгъл че светлината търпи пълно вътрешно отражение от повърхността на детектора. В областта на следите условието за ПВО се нарушава и те се проявяват като ярки петна на тъмен фон.

Скенера метод [37, 44]. С развитие на технологиите стават широко достъпни компютърните скенери с висока разделителна способност. Разделителната способност на тези скенери става достатъчно висока, за да могат да бъдат сканирани и запазени като компютърен файл изображения на следи в SSNTD, след което да бъдат преброени с подходящ алгоритъм. Първоначално, методът е предложен за електрохимично ецвани следи в неутронни детектори CR-39 [37]. При прилагането на метода авторите използват комерсиално достъпен скенер специално разработен за фотографски негативи с приставка за автоматично сменяне на негативите. С малки модификации и при подходящи размери на детекторите, приставката позволява пълно автоматизиране на процеса на сканиране на детекторите. Поради специфични особености на скенера, свързани със сканирането на негативи, се налага закупуване на допълнителен софтуер за управление на скенера. След сканирането получените изображения се записват като файл и се обработват от комерсиално разработен софтуер. Плюсовете на тази система са: пълна автоматизация на процеса, включително и разпознаване на идентификационния номер на детектора [37]; автоматичен тест за нехомогенност на детектора, базиран на броене на следите върху 16 отделни части от детектора [37]; по-висока ефективност при броене на следите (доближава се до ефективността на оптично броене) спрямо използваната до тогава от авторите комерсиална система с оптичен микроскоп с камера и алгоритъм за броене [37]; висока производителност ~ 1 детектор за минута (35000 детектора за 90 дни при 7h работен ден) [45]. Освен за електрохимично ецвани следи, авторите изпробват системата и за химически ецвани следи от α -частици в CR-39 при измерване на радон. Значително по-малки, химически ецваните следи са съизмерими с разделителната способност на скенера. Авторите отбелязват, че тази система работи сравнимо с използваната до тогава комерсиална система с оптичен микроскоп с камера и алгоритъм за броене. Въпреки това резултатите са с

по-голяма неопределеност, поради грешно разпознаване на прах и драскотини като следи, което може да се подобри с усъвършенстване на алгоритъма за броене. По-късно е предложен скенерен метод за броене на химически ецвани следи в детектори LR115 (Kodak-Pathe LR115 II) [44]. Скенерът, който е използван, е комерсиално достъпен (неспециализиран), а алгоритъмът за броене е изцяло разработен от авторите⁸. Освен за броене на химически ецвани следи в LR115, методът е успешно приложен и за броене на химически ецвани следи в Makrofol, които, подобно на следите в CR-39, са със значително по-лош контраст⁹ от тези в LR115. Методът е подробно разгледан в Глава III.

II.1.1.5 Видове устройства с твърдотелен детектор на следи с дифузионна бариера¹⁰

Освен за измерване на ^{222}Rn в сгради, тези устройства намират приложение и при измервания в почвен газ, води, както и за измервания на ^{220}Rn . Поради разнообразните им приложения, дизайнът на тези устройства също е много разнообразен. Тук ще се спрем на няколко модификации на "стандартната" за измервания в сгради дифузионна камера (фигура II.1), както и на някои по-интересни устройства.

Предимствата на дифузионните камери (устройство подобно на показаното на фигура II.1), които обуславят широкото им използване са:

- Слаба зависимост на измерванията от външни фактори – независими от влажност, температура, β или γ -лъчение, възможност за елиминиране влиянието на ^{220}Rn , слаба зависимост от атмосферното налягане¹¹ [3];
- Чувствителност, подходяща за кумулативни измервания на радон в сгради – минимална детектируема концентрация на $^{222}\text{Rn} \sim 30 \text{ Bq/m}^3$ при облъчване 1 месец [3];
- Ниска цена, която се определя основно от цената на SSNTD;
- Бърза и лесна подготовка на камерите.

Поради удобството при работа с дифузионните камери, в литературата са предложени множество варианти с устройство сходно на показаното на фигура II.1 и различни до-

⁸Методът е разработен и валидиран с участието на дисертанта (виж Глава III).

⁹Контрастът (отношението на интензитета на следата към интензитета на фона) е основен параметър при различаване на следите от фона при автоматичните алгоритми за броене.

¹⁰Подробен обзор на устройствата с твърдотелен детектор на следи е направен в [46].

¹¹Зависимостта от атмосферното налягане се изразява в промяна на пробега на α -частиците във въздух, респективно, в промяна на калибровъчния коефициент [47]. Тази зависимост е изследвана в [47] и може да бъде отчитана.

пълнителни подобрения. В биб. изт. [48] е предложен и по-късно изследван [49] метод за повишаване на чувствителността на SSNTD като на дъното на камерата е поставен тефлонов електрет, а срещу него, на дистанциращо устройство, е поставен самия SSNTD. Повишаването на чувствителността се дължи на електростатично отлагане на КПП върху електрета, което води до увеличаване на броя на следите, формирани от ^{218}Po и ^{214}Po .

В лит. изт. [50] е предложена дифузионна камера, в която освен SSNTD, са поставени и два TLD (термолуминисцентен дозиметър) – непокрит и покрит с полиетилен, с дебелина по-голяма от пробега на α -частиците на ^{222}Rn и КПП. Сигналът от покритият TLD се дължи само на γ -фона, а в непокрития – на γ -фона и α -частиците на ^{222}Rn и КПП. Тогава чистия сигнал от ^{222}Rn и КПП (респ. концентрацията на радон) може да се получи като от сигналът от непокрития TLD се извади сигналът от покрития. По този начин значително се увеличава диапазона от концентрации на радон, които могат да бъдат измервани със стандартните дифузионни камери – при едномесечно облъчване SSNTD достигат насищане при концентрации от порядъка 100kBq/m^3 , докато за TLD горната граница на измеряемите концентрации е от порядъка на 100MBq/m^3 . Такива устройства според авторите могат да намерят приложение при измервания в почвен газ или в случай на многократно завишени концентрации в сгради.

В [46] са разгледани още няколко варианта на дифузионни камери, някои от които са:

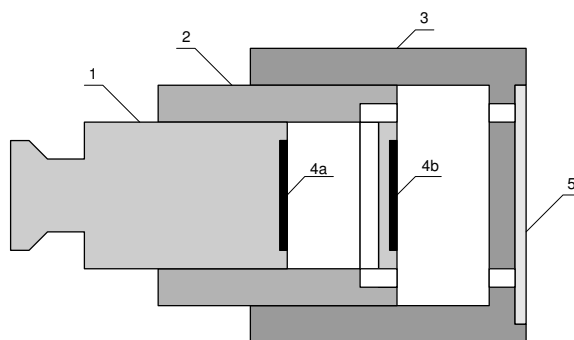
- Сдвоени камери – две камери с една и съща геометрия, но с различни дифузионни бариери, едната от които пропуска само ^{222}Rn , а другата ^{222}Rn и ^{220}Rn . Това позволява паралелни измервания на двата изотопа на радон;
- Камери с външен и вътрешен детектор, позволяващи освен концентрацията на радон да се определя и концентрацията на КПП;
- Отворена камера – камера без дифузионна бариера. При тези камери, слой въздух между отвора и детектора (т.е. височината на цилиндричния корпус на камерата) играе роля на дифузионна бариера.

Радонов филмов дозиметър с радонов абсорбер и SSNTD [51]. Този ”дозиметър” представлява SSNTD (CR-39) куплиран с тънка пластинка от материал абсорбиращ радон. Дозиметърът е запечатан в полиетиленово пликче, пропускащо радон. Пластинката абсорбира радон, като количеството на радон в пластинката е пропорционално на радона във въздуха. При разпадането на абсорбиращия радон и КПП, α -частиците които се излъчват формират следи в CR-39. Авторите на метода показват, че подбирайки пластинки с различен коефициент на разпределение, чувствителността на метода може да се

мени с три порядъка. Това прави метода приложим както за кратковременни измервания в жилища (няколко дни), така и за измервания във води и почвен газ.

RADAMON [52] е друго устройство, близко до дифузионната камера. Интересното при него е, че използвания SSNTD – CR-39 не е плътно залепен за дъното на камерата, а е повдигнат на малко, но добре фиксирано разстояние. Така детекторът ”гледа” един голям и един малък обем от съда. Тъй като CR-39 е чувствителен и от двете страни (за разлика от LR115 например), следи се формират и върху двете му повърхности. Съотношението на плътностите на следите от двете страни на детектора е $\sim 1:15$. По този начин се разширява диапазонът от измеряеми концентрации на ^{220}Rn с това устройство с приблизително един порядък.

Радоновият дозиметър с бутало¹² [53] (фигура II.3) е разработен специално за измервания на радон на работни места. Той представлява ”дифузионна камера”, работният обем на която е ограничен от бутало. По този начин дозиметърът може да бъде ”включван” за времето, за което човек е на работа, след което да бъде ”изключван”. Допълнително, дозиметърът е модифициран до двукамерен, който позволява едновременни или последователни измервания.



Фигура II.3: Устройство на двукамерен радонов дозиметър с бутало. Буталото (1) ограничава обема на вътрешния цилиндър (2), който от своя страна ограничава обема на външния цилиндър (3). Основата на външния цилиндър е затворена с дифузионна мембрана (5). На основата на буталото и на основата на вътрешния цилиндър са поставени SSNTD – съответно (4a) и (4b). Когато буталото или вътрешния цилиндър са ”затворени” съответният детектор е притиснат към срещуположната основа, при което в него не се формират следи. В ”отворено” положение има възможност всеки от обемите да е независимо отворен, т.е. двата детектора могат да бъдат облъчвани заедно (успоредно) или поотделно (последователно). При еднокамерния радонов дозиметър цилиндърът (2) липсва и буталото (1) директно ограничава обема на външния цилиндър (3).

Последно устройство, на което ще обърнем внимание е предложено в [54]. То се състои от две акрилни пластини с размери $14 \times 14 \text{ cm}$ на разстояние 4 mm една от друга.

¹²Радоновият дозиметър с бутало е патентован в Италия – виж [53].

Върху едната пластина, от вътрешната ѝ страна (в процепа между двете пластини) е прикрепен SSNTD. Радон-222 свободно дифундира в процепа, разпада се и формира следи в SSNTD заедно с получените при разпадането му КПП. Наличните в околния въздух КПП не могат да проникнат в процепа, тъй като бързо се отлагат по стените на пластините. От външната страна на пластините също е прикрепен SSNTD, с помощта на който се определя концентрацията на КПП в помещението.

II.1.2 Устройства с активен въглен

Тези устройства представляват контейнер (отворен или с дифузионна бариера), в който е поставен активен въглен. Активният въглен абсорбира радон, след което се измерва гама-спектрометрично или течно-сцинтилационно. Тъй като при метода се разчита на абсорбция на радона, този метод е приложим за кратковременни измервания: 1-7 дни [3]. Предимство на този метод е бързото и евтино получаване на резултат. Недостатъците са: този резултат не е представителен за оценка на риска, а по скоро може да служи като индикация за радонов проблем; т.к. радонът десорбира след края на облъчването, то анализът трябва да бъде направен възможно най-скоро; измерването е повлияно от фактори като влажност, вариации в концентрациите, температура, състав на активния въглен.

II.1.3 Устройства с електретен детектор

По правило, това са комерсиално достъпни системи, включващи камера с електрет и четящо устройство, позволяващо отчитане на измерването. Камерата представлява пластмасов съд с проводящи стени с електрет¹³ поставен на дъното [56]. През отвор с филтър, радонът от околния въздух дифундира в обема на електретната камера. При разпадането на ^{222}Rn и КПП в обема на камерата, излъчените α -частици йонизират молекулите на въздуха в камерата; отрицателно заредените йони се отлагат електростатично върху положително заредената повърхност на електрета, като същевременно редуцират заряда ѝ [56]. Намаляването на заряда на електрета зависи от интегрираната по времето на облъчване концентрация на радона [57]. Преди и след края на облъчването, потенциалът (зарядът) на повърхността на електрета се отчита с помощта на четящото устройство и по редуцирането му се определя интегралната обемна активност на радона. Освен за измерване на радон, електретните камери намират приложение при измерване на други

¹³Електретът представлява диелектрик, с квази-постоянен електричен заряд. Получаването и изследването на свойствата на електрети са подробно разгледани в библиограф. [55].

радиоактивни газове, както и при измерване на природна гама-радиоактивност [56].

Предимствата на електретните камери са:

- Възможност за кратковременни и дълговременни измервания. Обикновено, в камерата има два електрета: дебел – за кратковременни (2-7 дни) и тънък – за дълговременни (1-12 месеца) измервания [56, 57];
- Измерванията не се влияят от влажност и запрашеност на въздуха [57];
- Бързо и лесно отчитане на ”показанията” на електретите;
- Малка неопределеност на измерването [3].

Недостатъци:

- След редуциране на заряда на електрета, той трябва да бъде отново зареден. Това е сравнително скъпа процедура, изискваща специализирана апаратура [55];
- Чувствителност към гама-фона [56];
- Старееене (свързано с предните два недостатъка): При съхранение (неизползване) на камерите, електретът се покрива със специален капак. Между електрета и капака остава празнина, която играе роля на камера. При това, наличието на радон и на естествен гама-фон води до редуциране на заряда. Според изследването публикувано в [56] това обяснява около 25% от редуцирания заряд. Отново според това изследване, основната част от разреждането е характеристика на електрета. Процесът на старееене е бавен (характерното време за полунамаляване на заряда е 14 години за дебелия и 68 години за тънкия [56]) и не влияе съществено на измерванията (продължителност <1 година). Въпреки това, старееенето води до оскъпяване на измерванията, т.к. се налага презареждане на електрета;
- Чувствителност към ^{220}Rn . Според библ. изт. [57], тази чувствителност е 30-40 пъти по-малка от чувствителността за ^{222}Rn . Въпреки това, при концентрации на ^{220}Rn многократно надвишаващи тези на ^{222}Rn , може да повлияе съществено на измерването.

II.1.4 Електронни интегриращи устройства¹⁴

Според [3] това са устройства, които в повечето случаи представляват твърдотелен силициев детектор, поставен в дифузионна камера. Силициевият детектор регистрира α -

¹⁴Наименованието е превод от английски – Electronic Integrating Devices

частиците, получени при разпадането на ^{222}Rn и КПП в обема на камерата. Интегралният брой α -частици е пропорционален на интегрираната за времето на измерване концентрация на радон. Недостатък на тези устройства е липсата на процедура за рутинно калибриране дори на по-често използваните.

II.1.5 Монитори за непрекъснати измервания¹⁵

Тези устройства са сравнително скъпи, комерсиално достъпни системи, с възможност за измерване в различни среди (въздух, вода, почвен газ). Детекторите, които се използват в тези системи могат да бъдат сцинтилационни камери, йонизационни камери, силициев детектори. Обикновено, тези уреди правят непрекъснато последователни дискретни измервания за време избрано от оператора. Данните се записват във вътрешна памет на уреда, като има възможност да се записват и визуализират на компютър с помощта на софтуер, съпътстващ уреда. Мониторите подлежат на рутинно калибриране (обикновено се продават калибрирани) и при измерванията директно отчитат обемна концентрация на радон. Освен концентрацията на радон, повечето монитори измерват влажност, температура, налягане, както и други параметри на околната среда. Някои монитори със силициев детектор позволяват алфа-спектрометрични измервания, като по този начин могат да бъдат правени едновременни измервания на ^{220}Rn и ^{222}Rn [3]. Основният недостатък на тези уреди е високата им цена, в следствие на което те не могат да бъдат използвани при масови измервания на радон в жилища. По-скоро могат да бъдат разглеждани като прецизни лабораторни уреди. Извън лабораториите, приложението им се ограничава до изследване на времеви вариации на концентрациите на радон, изследване на ефективността на реконструкции на сгради, целящи понижаване концентрациите на радон и немащабни полеви измервания.

II.1.6 Компакт дискове¹⁶ CD/DVD

Принципът на действие на тези "устройства" [15] се основава на способността на материала¹⁷, от който се произвеждат CD/DVD, да абсорбира ^{222}Rn [58] комбинирана със свойството на материала на SSNTD. След като бъде абсорбиран, ^{222}Rn и КПП се разпадат в обема на поликарбоната и излъчените от тях α -частици формират следи. Плътността на

¹⁵Наименованието е превод от английски – Continuous Radon Monitors

¹⁶Систематизирано описание и разработване на компакт-дисковият метод през последните няколко години е дадено в [27].

¹⁷Поликарбонатният материал, от който се произвеждат CD/DVD, е синтезиран на основата на Бисфенол-А. Едно от най-известните му комерсиални наименования е Makrofol, използван като SSNTD.

следите на дълбочина по-голяма от 80 микрона е пропорционална на интегрираната за времето на облъчване концентрация на ^{222}Rn . При дълбочина по-малка от 80 микрона принос към следите имат отложените по повърхността на диска КПП на ^{222}Rn и ^{220}Rn . Радон-220 няма принос към следите на дълбочина по-голяма от $80\mu\text{m}$, т.к. поради малкия си период на полуразпадане (респ. малка дължина на дифузия) не може да навлезе в дълбочина на поликарбоната. След края на облъчването (напр. получаване на диск от изследваното жилище), от диска се отрязва парче (обикновено $1/4$, като е възможно да бъде обработен и целия диск), което се подлага на химично преецване с цел отнемане на 80 микрона от повърхността му. След това дискът се ецва електрохимично, обработената част от детектора се сканира с помощта на компютърен скенер и полученото изображение се запазва. Следите в сканираното изображение се преброяват със специално разработен алгоритъм за броене на електрохимично ецвани следи [59] и се определя плътността на следите. Връзката между чистата плътност на следите, времето на облъчване и концентрацията на радон се задава с калибровъчен коефициент, който е определен при предварително проведено калибриране¹⁸.

Първоначално, методът е предложен за прецизни, ретроспективни измервания, позволяващ определяне концентрациите на ^{222}Rn с неопределеност $\sim 20\%$ [15, 60, 27]. Изследванията върху него показват, че при едногодишни измервания, минималната детектируема концентрация¹⁹ (MDAC – Minimum Detectable Activity Concentration) на ^{222}Rn е $\sim 40\text{Bq}/\text{m}^3$. Това прави методът приложими и за проспективни измервания, т.к. дори при едногодишни измервания могат да бъдат откривани сгради с радонов проблем. Безспорно, основните предимства на метода са свързани с приложението му за ретроспективни измервания (виж Приложение А). Въпреки това, методът позволява някои възможности, които го правят приложим и при масови, проспективни измервания:

- Възможност за изцяло дистанционно организиране на масови измервания [61]. Компактните размери на CD/DVD позволяват да бъдат изпращани по пощата. По този начин не се налага ангажирането на хора, които да раздават и събират детектори;
- Ниска цена на измерването – цената практически се определя от вложения човешки ресурс;
- В повечето жилища обикновено има дискове на възраст от порядъка на 1-2 години.

¹⁸Процедурата описана тук се следва при рутинни ретроспективни измервания на ^{222}Rn в лаб. Дозиметрия и Лъчезащита при СУ, където дисертантът е зачислен като докторант и е извършил работата по дисертацията.

¹⁹MDAC е определена на база на данните в [59] – минимална плътност на следите, различима от фона е 5.5cm^2 , което съответства на интегрирана обемна активност на радон $\sim 40\text{Bq y}/\text{m}^3$.

Това дава възможност, още в началото на масова кампания по измервания, да бъдат събрани вече облъчени дискове. Това всъщност е ретроспективно измерване, но ако в рамките на този период не са правени реконструкции на жилището или не е сменено жилището, такова измерване е представително в смисъла на проспективните измервания (за ретроспективни измервания препоръчителната възраст на диска е поне 5 години).

Недостатъци:

- Сравнително висока MDAC $\sim 40 \text{Bq/m}^3$ при едногодишно експониране. Тази стойност е близка до средната стойност на концентрациите на радон в сгради [3]. MDAC може да бъде намалена няколко пъти, ако при проучването се използват нови дискове от една партида и фоновата плътност на следите за партидата се оцени с по-добра неопределеност. Това е възможно т.к. оценката на фоновата плътност на следите [59] на базата, на която е оценена MDAC, е направена за целите на ретроспективните измервания – въз основа на различни марки дискове закупени от различни магазини (при ретроспективните измервания няма възможност за предварителна оценка на фона за конкретния диск, затова се прави оценка на базата на много различни нови дискове).
- Вариации в чувствителността между различните дискове (има отношение при използване на вече налични дискове). Този недостатък може да бъде компенсиран чрез използване на нови дискове или чрез *a posteriori* калибриране.
- Вариации във фона на различните дискове (има отношение при използване на вече налични дискове). Това може да доведе до допускане на грешка от първи или втори род [27]. Допускане на грешка от първи род (т.е. да приемем, че в даденото жилище има радонов проблем, а в действителност такъв да няма) може да бъде компенсирано с повторно измерване – препоръчително с нов диск. Допускането на грешка от втори род е по-опасно. При измерване с диск на възраст една година, обемната активност на радона може да бъде подценена с 65Bq/m^3 (при разглеждане на най-лошия сценарий) [27]. Затова, при използване на вече налични дискове, е препоръчително да се използват по-стари дискове и по възможност повече от един от жилище.

Трябва да се има предвид, че при използване на нови дискове (закупени от една партида за целите на проучването) единствен недостатък на метода остава първият от гореизброените.

Въз основа на направения преглед можем да заключим, че най-подходящи за измерване на радон в жилища са устройствата с твърдотелен детектор на следи и дифузионна мембрана (разгледани в секция II.1.1). Това е обусловено от комбинацията от ниска цена, ниска неопределеност на резултатите, лесна употреба, приложимост за измервания в различни среди – въздух (сгради), почвен газ, води, възможност за рутинизиране на процедурите по калибриране и проверка. За да бъдат използвани тези устройства, са необходими методи за бързо и надеждно броене на следите. Най-перспективни за момента са скенерните методи с алгоритъм за броене. Затова една от целите в настоящата дисертация е развитие на метода на дифузионните камери. Задачите, които са поставени във връзка с тази цел са: разработване на алгоритъм за автоматично броене на следи в сканирани изображения на SSNTD и разработване на процедура за калибриране на дифузионни камери. Тези задачи са обект на Глава III от настоящата дисертация.

II.2 Методи за измервания на радон във води и в почвен газ

Измерванията на радон във води и почвен газ представляват интерес в области на науката като:

- Радиационна защита. Основни източници на радон в жилища са ексхалацията от почвата (почвен газ) и води, използвани за питейно-битови нужди. Установяването на източника на радон е важно при предприемането на по-нататъшни мерки за снижаването на концентрацията му. Когато източникът е почвен газ, мерки могат да бъдат предприети още по време на строителството. Затова в препоръките на комисията на европейската общност²⁰ (СЕС) препоръчителните нива на радон в сгради са разделени – за вече построени сгради $400\text{Bq}/\text{m}^3$ и за новостроящи се сгради $200\text{Bq}/\text{m}^3$ [6], като в много от европейските страни са възприети нива близки до тези [7]. В България също са възприети такива нива, но те са с препоръчителен характер [10]. Концентрацията на радон във води, използвани за питейно-битови нужди, също подлежи на контрол – препоръчителното ниво на СЕС е $100\text{Bq}/\text{L}$ [12], като нивата възприети в европейските страни варират между $20\text{Bq}/\text{L}$ и $1000\text{Bq}/\text{L}$ [7]. Измерванията на радон във води се използват също при определяне на съдържанието на радий във питейни води. Максималната допустима концентрация на ^{226}Ra във води, използвани за питейно-битови нужди, според българското законодателство е

²⁰Превод от английски – Commission of the European Community (СЕС).

0.15Bq/L [14].

- Радиоекология. В уранодобивната промишленост, след извличане на урана от рудата, остава високо-радиоактивен материал, който бива съхраняван в хвостохранилища²¹. От друга страна рудниците улесняват протичането на почвочвени и дъждовни води и обогатяването им с естествените радиоактивни изотопи от останалата руда. Затова се вземат мерки за неразпространение на оставащия радиоактивен материал. Въпреки това, намесата на човека в разпределението на естествената радиоактивност оказва влияние върху околната среда. Характерно за замърсяванията в следствие на уранодобива е нарушаване на равновесието в радиоактивните семейства и високо съдържание на ²²⁶Ra, ²²²Rn и КПП²².
- Науките за земята (Геофизика, Геохимия, Хидрология и др.). Дифузията на ²²²Rn в почвата е ограничена от малкия му (в това отношение) период на полуразпадане ($T_{1/2}=3.82d$). Поради това, концентрацията му в повърхностния почвен слой не може да е с произход от голяма дълбочина, освен ако няма друг механизъм на разпространение различен от дифузия [62]. Поради това разпределението на радон в почвен газ може да бъде използвано при следене на вулканична активност, предсказване на земетресения, картиране на разломи, очертаване на тектонски линии [62]. Концентрациите на радон могат да бъдат използвани и при разграничаване на аномалии, дължащи се на земетръсна или вулканична дейност [63]. Друго приложение на измерванията на радон в почвен газ е откриване на водоносни пукнатини в гранитни слоеве в полупустинни и пустинни райони [64]. От друга страна, ²²²Rn във води се използва като маркер за проследяване транспорта на води в почвочвени водоносни слоеве, в повърхностни води, както и за изследване на взаимодействието между почвочвени и повърхностни води [65, 66, 67] (характерна разлика е много по-високата концентрация на радон в почвочвените води в сравнение с повърхностните [66, 67]). Измерванията на ²²²Rn в почвочвени води също могат да служат при предсказване на земетресения [68].

²¹От руски хвост – опашка. Визира се ”опашката” в радиоактивната верига на разпадане след извличане на урана.

²²След извличане на урана, в отпадъчния материал остава сравнително дългоживеещия ²²⁶Ra ($T_{1/2}=1600u$, виж Приложение Б), дъщерния продукт на който е ²²²Rn.

II.2.1 Методи за измерване в почвен газ

Устройствата за измерване на радон в почвен газ до голяма степен се препокриват с тези за сгради [68, 69]:

- Пасивни интегриращи устройства – например устройства със SSNTD, електрети, поликарбонати;
- Устройства за дискретни²³ измервания. Това обикновено са не много сложни устройства за измерване на място или вземане на проба почвен газ за по-нататъшна лабораторна обработка;
- Монитори – разгледани по-горе в Секция II.1.5 като ”Монитори за непрекъснати измервания”. Скъпи комерсиални системи, позволяващи продължителни измервания в почвен газ и във води. Въпреки възможността за продължителна работа без намеса на оператор, високата цена на тези системи ограничава масовото им използване. Поради това на тези устройства няма да се спираме в тази секция.

II.2.1.1 Пасивни интегриращи устройства

За разлика от концентрациите на радон в сгради (няколко десетки Bq/m³), концентрациите в почвен газ са много по-високи – от няколко kBq/m³ до десетки MBq/m³ [70]. Поради това измерванията с пасивни интегриращи устройства не са с голяма продължителност, т.к. детекторите се насищат. Характерните времена за облъчване на устройствата със SSNTD са 1-3 седмици, а за електрети 2-40 дни [68, 69]. При измервания с поликарбонати (при продължителност на облъчването 10 дни) може да бъде покрит целия диапазон от концентрации на радон в почвен газ [59].

При устройствата със SSNTD, обикновено се използва PVC тръба с диаметър 5-10cm и дължина 25-100cm, която се поставя в предварително изкопана дупка. В някои случаи в тази тръба е поставена дифузионна камера [68], в други – SSNTD е директно поставен в тръбата [71]. След поставяне на устройството, дупката се заравя внимателно, така че да няма директен контакт с атмосферата. Предназначението на тръбата (освен предпазване на детектора) е да се осигури облъчване във въздушна среда. Предимството на такова облъчване не е еднозначно, т.к. дупката променя условията на дифузия на радон в почвения газ. При някои устройства, с цел разширяване на обхвата на устройствата, се добавят TLD детектори [50, 71], както беше описано в Секция II.1.1. В практиката на лаборатория Дозиметрия и лъчезащита на СУ, дифузионните камери директно се поставят

²³ Дискретни измервания – от английски ”grab-sampling”.

в предварително изкопана дупка и се заравят, като при пластмасовите камери дифузионната мембрана се покрива с плат, за да не се разкъса, а металните директно се заравят (виж Секция III.2).

Подобно на устройствата със SSNTD, електретните камери също се поставят в тръба при измервания в почвен газ [72]. Електретни камери се използват сравнително рядко²⁴ за измервания в почвен газ (в сравнение с устройствата със SSNTD), поради което няма да се спираме на тях.

След прилагането на CD/DVD метода за измервания във въздух, беше показано, че методът е приложим и за измервания в почвен газ [17]. Здравината на материала и процедурата по измерване на сигнала от детектора (цял диск, парче от диск или пластинки Makrofol) позволяват детекторът да бъде директно заравян в почвата без да се вземат мерки за защитаването му от увреждания по време на облъчването. Това улеснява прилагането на метода, като същевременно не променя условията на дифузия на радон в почвата. Поради високите концентрации на радон в почвен газ, методът предлага възможност за два варианта²⁵ на измерване. Първият вариант е аналогичен на интегралните измервания във въздух: По време на облъчването поликарбонатът (CD/DVD/пластинка Makrofol) абсорбира ^{222}Rn . Радонът и КПП се разпадат в обема на детектора и формират следи. След края на облъчването детекторът се оставя да десорбира²⁶ около 2 седмици или се прави корекция за непълна десорбция [27]. Това се налага, т.к. при кратковременни облъчвания (от порядъка на 2 седмици или по-кратки), следите формирани по време на преходните процеси на сорбция и десорбция не могат да бъдат пренебрегнати. Детекторът се прецева с цел отнемане на повърхностния слой, след което се еца електрохимично с цел проявяване на следите. Частта от детектора с проявените следи се сканира и следите се преброяват със специално разработен софтуер [59]. Алгоритъмът за броене различава дракотини (получени по време на облъчването на детектора) и успешно се справя с броенето на следите при плътности до 2000cm^{-2} [59, 27]. При 10-дневно облъчване, това позволява измервания в интервала $1\text{kBq/m}^3 - 10\text{MBq/m}^3$ [59], който покрива целия интервал от концентрации на радон в почвен газ [70].

При вторият вариант, след края на облъчването, поликарбонатите се измерват

²⁴Това е твърдение на дисертанта, базирано на направен литературен преглед.

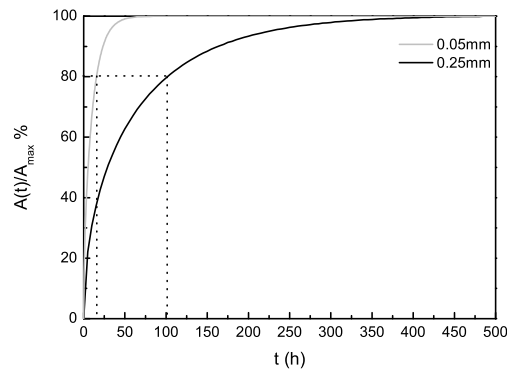
²⁵Двата варианта на прилагане на метода са разработени и използвани при измервания на ^{222}Rn в почвен газ от екипа на лаб. Дозиметрия и лъчезащита към Физически факултет на СУ с участието на дисертанта. Вторият вариант е обект на Глава IV от настоящата дисертация, а първият е разработен в [27].

²⁶Под десорбция се разбира процеса на намаляване на активността на радона в поликарбоната, дължащо се на радиоактивно разпадане и дегазиране.

гама-спектрометрично или чрез общо бета-броене. При тези измервания се регистрират γ -квантите или β -частиците, излъчени при разпадането на ^{214}Bi и ^{214}Pb , които са КПР на ^{222}Rn (виж Приложение Б). За разлика от първия вариант, при този измерването трябва да бъде проведено кратко време след края на облъчването, т.к. радонът десорбира и активността (съответно измерваният сигнал) намалява. Продължителността на облъчването може да бъде от няколко часа до няколко дни в зависимост от размерите на използвания поликарбонат, поради зависимостта на процесите на сорбция и десорбция на радон в поликарбоната от размерите му [73]. В зависимост от целта на измерването, времето на облъчване подлежи на оптимизиране (виж Глава IV). Максималната продължителност обаче не е необходимо да надхвърля 3-4 дни, т.к. при 4-дневно облъчване дори на дебел²⁷ поликарбонат абсорбираната активност бързо достига 80% от максималната (равновесна) активност (при предположение за постоянна концентрация на ^{222}Rn в почвения газ), след което абсорбираната в поликарбоната активност продължава да нараства, но това става бавно (фигура II.4). Характерното за този вариант на приложение на метода е, че измерената активност е осреднената с тежест активност, абсорбирана за последните няколко дни от облъчването (за разлика от първия вариант, при който резултатът е средната за целия период активност). Това се дължи на факта, че по време на облъчването радон непрекъснато се абсорбира и десорбира и колкото по-назад във времето е абсорбирано дадено количество радон, толкова по-малък е приносът му към измерения сигнал (фигура II.5). Предимства на поликарбонатния (CD) метод:

- Измерванията покриват целия диапазон от концентрации на радон в почвен газ, представляващи практически интерес [59];
- Измерването с интегриращи устройства дава оценка за средната за времето на облъчване стойност на обемната активност на радон. Това елиминира възможността за грешка от типа "измерване на пикова стойност". Ако целта, обаче, е да се проследи времевата зависимост на концентрацията, това може да бъде постигнато с прилагане на втория вариант на метода с тънки пластинки;
- При облъчване не се променят условията за дифузия на радон в почвата;
- Възможност за "експресни" измервания, използвайки втория вариант за прилагане на метода;

²⁷Под дебел поликарбонат се разбира поликарбонат с характерни размери надвишаващи няколко пъти дължината на дифузия L_D на ^{222}Rn в поликарбоната ($L_D \sim 0.05\text{mm}$).

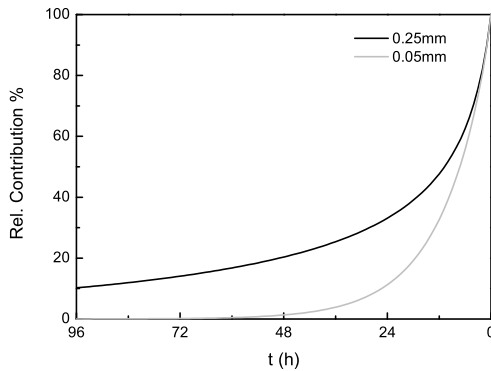


Фигура II.4: Зависимост на абсорбираната активност на ^{222}Rn в поликарбонатни пластинки (дебелини 0.05mm и 0.25mm) от времето на облъчване, нормирана на максималната активност която може да бъде абсорбирана при дадена постоянна концентрация на ^{222}Rn в почвения газ (виж Глава IV и библиограф. изт. [73]). При пластинката с дебелина 0.25mm в началото на процеса на сорбция активността бързо нараства – за 100h ($\sim 4\text{d}$) достига 80%, след което бавно продължава да нараства и достига 100% след $\sim 500\text{h}$. При 0.05mm пластинка активността достига 80% от максималната за по-малко от едно денонощие и 100% за по-малко от три денонощия.

- Възможност за дублиране на измерването, прилагайки първо втория, а след това първия вариант;
- Дори при насищане на детектора (при прилагане на първия вариант), има възможност да се повтори измерването като се отнеме повърхностен слой с по-голяма дебелина. Тъй като плътността на следите намалява експоненциално в дълбочина на диска [60], то на по-голяма дълбочина детекторът няма да е наситен и ще може да се определи плътността на следите;
- Възможност за масови измервания и картиране на райони – това се осигурява от ниската цена на измерванията и възможността лесно и бързо поставяне и събиране на детекторите;

Недостатъци:

- Времева зависимост на измерванията. Процесите на сорбция и десорбция са време-зависими, поради което връзката между измерения сигнал и обемната активност на радона в почвения газ зависи от времената на сорбция и десорбция. Решаването на този проблем е обект на настоящата дисертация – в Глава IV е описан теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати;



Фигура II.5: Относителен принос към измервания сигнал на една и съща активност абсорбирана в поликарбонатна пластинка (дебелини 0.05mm и 0.25mm) в зависимост от изминалото от абсорбирането ѝ време. При по-тънки пластинки приносът намалява по-бързо с изминалото време.

- Температурна зависимост на измерванията. Процесите на сорбция и десорбция са температурно зависими. Това се дължи на температурната зависимост на коефициента на разпределение²⁸ и дължината на дифузия на РБГ в поликарбонати. Ако тези зависимости са известни, може да бъде направена температурна корекция. В Глава IV е описан метод, позволяващ изследване на тези зависимости. В [60] температурната зависимост на величините е изследвана при няколко температури и е показано как може да бъде направена температурна корекция за първия вариант на метода;
- Резултатите не могат да бъдат получени веднага. За разлика от повечето дискретни методи и комерсиалните монитори, при интегриращите устройства (в частност поликарбонатите) е необходимо време за облъчване.

II.2.1.2 Устройства за дискретни измервания

При тези устройства обикновено се използва сцинтилационна камера с обем 0.1-3L със стени покрити със сцинтилатор ZnS(Ag) [68]. Предимство на тези устройства е, че почвеният газ може директно да бъде вкаран в обема на камерата. Вкарването на газа в камерата може да бъде в проточен режим или "дискретно" като се използва предварително вакуумирана камера [68]. Тези устройства могат да бъдат използвани и за индиректни измервания – например след концентриране на по-голям обем въздух [68].

Друг дискретен метод, предложен в [75], се основава на големия коефициент

²⁸Коефициентът на разпределение (от английски "partition coefficient") е безразмерна величина, мярка за разпределението (разтворимостта) на дадено вещество между две среди. По дефиниция коефициентът на разпределение е отношението на концентрациите на даденото вещество в две несмесващи се среди, намиращи се в равновесните [74]. В някои случаи в литературата като синоним се използва разтворимост (от английски "solubility").

на разпределение на радон на границата масло/въздух. При този метод, почвеният газ се барботира през зехтин, след което зехтина се измерва гама-спектрометрично, при което се регистрират γ -квантите излъчени при разпадането на КПП на радона. Предимство на този метод пред метода със сцинтилационна камера е, че измерването е спектрометрично – т.е. директно могат да бъдат разделени ^{222}Rn от ^{220}Rn .

Предимства на устройствата за дискретни измервания:

- Измерването може да бъде проведено на място;
- Възможност за проследяване на зависимостта на концентрацията от времето.

Недостатъци:

- При измерванията са необходими сонди при изпомпване на почвения газ;
- Измерванията са дискретни. Могат да бъдат правени и продължителни измервания, но това изисква постоянно захранване и постоянна работа на устройствата;
- Тези устройства нямат потенциал за масови измервания или картирания.

II.2.2 Методи за измерване във води ²⁹

Концентрациите на радон във води срещани в природата варират от $\sim 1\text{-}10\text{mBq/L}$ в открития океан, през $\sim 0.1\text{-}10\text{Bq/L}$ в реките, $\sim \times 10\text{Bq/L}$ в подпочвени води [76]. В някои случаи обаче, концентрациите могат да надвишават 1000Bq/L – например концентрацията на радон във водата използвана в минералните бани в Момин проход е $\sim 1500\text{Bq/L}$. Широкият диапазон, в който варират концентрациите на радон във води, затруднява избора на метод за измерването им. Разбира се, изборът може да бъде улеснен, ако се вземе предвид типа на водата, в която трябва да се мери, но в общия случай, методът трябва да обхваща целия диапазон.

Методите за измерване на радон във води могат да се разделят на две групи – методи за директно измерване и методи за измерване чрез отделяне на радона от водата във въздух и прилагане на метод за измерване във въздух. Първият тип методи са за предпочитане, т.к. прехвърлянето на радон от водна във въздушна фаза е температурно зависим процес. От друга страна, вторият тип методи използват вече разработени устройства за измерване във въздух. Поради това се развиват и двата типа методи.

²⁹Преглед на методи за измерване на радон във води е направен в [27, 68].

II.2.2.1 Методи за директно измерване във води

Може би най-широко използваният метод за измерване на радон във води е течено-сцинтилационното броене [27]. Предимствата на този метод са ниския праг на детектиране, лесно прилагане, директно измерване на водната проба (водната проба директно се смесва с течено-сцинтилационния коктейл). Недостатък е високата цена на детекторната система. Според обзора направен в [27] MDAC на комерсиалните установки е $\sim 0.1 \text{Bq/L}$, като в при някои специално разработени некомерсиални установки е достигната $\text{MDAC} \sim 0.001 \text{Bq/L}$.

Друг метод за директно измерване на радон във водата е гама-спектрометрията. При този метод водната проба директно се измерва, като се регистрират гама-квантите, излъчени от КПП на радон. Обикновено се използват детектори от свръхчист германий (HPGe) като обемът на пробата не е много голям, което е недостатък на метода, т.к. не могат да бъдат регистрирани ниски активности [27]. Един интересен вариант на гама-спектрометричен метод е предложен в [77]. При него "in situ" се взема проба в съд с обем 210L или 1000L. На капака на съда е прикрепен сцинтилационен детектор от CsI(Na), с който се измерва пробата. Оценката на авторите за MDAC на метода е $\sim 0.5 \text{Bq/L}$.

На скоро беше показано, че поликарбонатният (CD) метод, освен за измервания на радон в жилища и почвен газ, може да бъде приложен и за измервания във води [16, 13, 27]. Методът може да бъде приложен и в двата варианта, използвани при измервания в почвен газ (Секция II.2.1). Предимствата на метода са: лесен за прилагане, възможност за масови измервания, ниска цена, поликарбонатът може да бъде директно облъчен във водоизточника. Методът позволява облъчването да стане и в херметичен съд. Недостатък (виж Секция II.2.1) е температурната и времевата зависимост на процесите на сорбция и десорбция. В [27] е оценено MDAC за двата варианта на прилагане на метода: 1. Вариант с ецване на следи: $\text{MDAC} \sim 0.06 \text{Bq/L}$ при 50 дни време на облъчване; 2. Вариант с регистриране на β - или γ -лъчението на КПП: $\text{MDAC} \sim 12 \text{Bq/L}$ при 48h време на облъчване. Предвид тези оценки, методът може да бъде приложен за измервания практически във всички типове води. Затова е необходимо познаване на процесите на сорбция и десорбция. Изследването на тези процеси е обект на Глава IV от настоящата дисертация.

Други интегрални методи за директно измерване също се споменават в литературата, но се използват сравнително рядко. В [78] например е предложен метод, при който устройство със SSNTD тип RADAMON (виж II.1.1) е поставено в херметично за водата пликче и е потопено директно във водоизточника. Въпреки че е приложен успешно за измервания на радон във води, методът не е добил популярност.

II.2.2.2 Методи за измерване чрез трансфер на активността от водна във въздушна среда

Двата от най-често използваните метода за трансфер на радон от водна във въздушна среда са: поставяне на водната проба в барботьор и барботиране с несъдържащ радон въздух или впръскване на водната проба в херметичен съд с несъдържащ радон въздух. Обогащението с радон въздух се прекарва през устройство за измерване на радон във въздух. Това може да бъде сцинтилационна камера, йонизационна камера, камера със силициев детектор. На този принцип се основават и системите за измерване на радон във вода, прилежащи към комерсиалните радонови монитори. При измерване на по-ниски концентрации, обогащението с радон въздух може да бъде вкаран в криогенна уловка (съд при температура на течния азот) и по този начин радонът може да бъде концентриран [76].

Метод, базиран на барботиране и концентриране е предложен в [79]. При този метод, след барботиране през водната проба, въздухът се барботира и през зехтин. Благодарение на големия коефициент на разпределение на радон за границата масло/въздух (около 100 пъти по-висока от за вода/въздух), радона се концентрира в зехтина. След това зехтина се измерва гама-спектрометрично. Авторите отбелязват, че чувствителността на метода може да се повиши, ако вместо зехтин се използва течен сцинтилатор, но това изисква наличие на система за точно-сцинтилационно броене.

Друг метод за екстракция на радон от вода е използван при разработване на системите, предложени в [66, 67]. При този метод се използват тръби (дълъг маркуч или тънки влакна) от поръзен полипропилен. Тръбата (с голяма контактна площ) се поставя в контакт с водата. В случая на маркуч – серпентина с много, раздалечени една от друга намотки, се потапя във водния басейн, а при влакната – водата се вкарва в контейнера с влакната. Тъй като полипропиленът е хидрофобен, в тръбите не навлиза вода, но радонът лесно дифундира в тръбите. Въздухът от тръбите се прекарва през комерсиален радонов монитор и се определя концентрацията на радон.

Няколко устройства се основават на свободна деemannация на радон от водата. При две от тях, в затворен съд се поставя водна проба, а над повърхността на водата се поставя SSNTD [80, 81]. Първото устройство представлява 10L пластмасова кофа, в която е сипана 2L водна проба, а на капака на кофата е поставен LR115. Второто е 1L бутилка с 0.75L водна проба. На гърлото на бутилката вместо капачка е поставена дифузионна камера с дифузионна мембрана и Makrofol SSNTD. На свободна деemannация се основава и едно комерсиално устройство [82]. То представлява водонепромокаема тръба с диаметър 5cm и дължина 50cm. В горните 15cm на тръбата е поместена електрониката, обработваща сиг-

нала от силициев детектор. Участъкът от тръбата с електрониката е херметично затворен, а силициевият детектор е поставен, така че "гледа" към отворения край на тръбата. При измервания във вода, отвореният край на тръбата се потапя $\sim 5\text{cm}$ във водата. Радонът дееманиращ от водата достига равновесие в тръбата. Силициевият детектор регистрира α -частиците, излъчени при разпадането на радон и КПП. Устройството позволява работа в режим на ниска консумация, при който на силициевия диод не е подадено напрежение и за събиране на заряда се разчита единствено на напрежението, възникващо на границата между p-n прехода [82].

Направеният преглед на по-често използваните методи за измерване на радон във води и почвен газ и сравнението на поликарбонатния метод с тях показват че, поликарбонатният метод е приложим за измерване на радон във всички разгледани области. В някои случаи дори се оказва по-подходящ от широко използваните методи. Някои от основните му предимства са:

- Възможност за интегрални и дискретни измервания;
- Възможност за масови измервания;
- Възможност за директно измерване във водоизточника или в случая на почвен газ – не променя условията на дифузия на радон в почвата;
- Широк диапазон от измеряеми активности, покриващи целия диапазон от активности в почвен газ и до голяма степен във води;
- Лесен за прилагане;
- Ниска цена на измерванията;
- Във варианта, в който се използват свойствата на поликарбоната на SSNTD, методът е разработен до ниво да бъде рутинно прилаган за измервания във въздух, води и почвен газ [27].

За да бъде прилаган поликарбонатният метод без ограничение във варианта, при който се регистрира β - или γ -лъчението на КПП, е необходимо да се познават процесите на сорбция и десорбция на радон в поликарбоната. Изследването на процесите на сорбция и десорбция и разработването на метода в този вариант са цел на настоящата дисертация и задачите свързани с постигането на тази цел са обект на Глава IV.

II.3 Методи за измерване на криптон и ксенон

Основен източник на радиоактивните изотопи на криптон и практически единствен източник на радиоактивните изотопи ксенон е човешката дейност в области като ядрената енергетика, ядрените опити, производство на радиофармацевтици. Най-значими от тези изотопи са ^{85}Kr – поради сравнително големия си период на полуразпадане ($T_{1/2}=10.7\text{y}$) и ^{133}Xe – поради големия му добив при ядреното делене [83]. Тъй като методите за измерване на ^{85}Kr и ^{133}Xe и областите, в които се налагат такива измервания, до голяма степен се прекриват, двата РБГ са разгледани заедно.

Поради сравнително големия си период полуразпадане, ^{85}Kr се натрупва в горивните елементи при делене на ядреното гориво. Тъй като горивните елементи са херметични, сравнително малка част от ^{85}Kr се отделя в топлоносителя по време на горивния цикъл и при съхранението на отработеното гориво. Основната част от ^{85}Kr се отделя при разхерметизиране на горивните елементи в заводите за преработка на ядреното гориво [21]. Това е основният механизъм за получаване и натрупване на ^{85}Kr в атмосферата [21]. Вторият по тежест източник на ^{85}Kr в атмосферата са ядрените опити [21]. Последен по тежест източник е генерирането на ^{85}Kr в атмосферата чрез захващане на космични неутрони в ядрото на стабилният ^{84}Kr [21]. За периода 1945-2000 година, в атмосферата са постъпили 10600PBq ^{85}Kr . Това води до 4800PBq ^{85}Kr в атмосферата³⁰ към 2000 година (след корекция за разпадане) [21]. Това съответства на обемна активност на ^{85}Kr в атмосферата $\sim 1.3\text{Bq}/\text{m}^3$ [84], като концентрация постоянно се увеличава³¹ [21].

Поради малкия си период на полуразпадане ($T_{1/2}=5.243\text{d}$), ^{133}Xe не се среща в природата. При делене на ядреното гориво при работата на АЕЦ, ^{133}Xe се натрупва в горивните елементи. Тъй като те са херметични, ^{133}Xe се задържа в тях и само малка част се изпуска в топлоносителя. По време на съхранението на отработеното гориво също се изпуска малка част от ^{133}Xe . Поради малкия му период на полуразпадане, до преработката на отработеното гориво, натрупаният в горивните елементи ^{133}Xe практически се разпада. Така, в ядрено-горивния цикъл, единствен източник на ^{133}Xe при нормална работа на АЕЦ, е самата АЕЦ. Другият съществен източник на ^{133}Xe в природата са заводите за производство на радиофармацевтици. За тях са характерни пикови изхвърляния, които

³⁰По-малко от 5% от тази активност се дължи на ядрените опити и аварията в Чернобил и по-малко 0.002% се дължи на равновесната активност (0.09PBq) на ^{85}Kr генериран чрез захващане на неутрони в ядрото на ^{84}Kr [21].

³¹При конверсионен фактор $8\text{nSv}/\text{y}/\text{Bq}/\text{m}^3$ [84], годишната доза за населението, дължаща се на натрупания в атмосферата ^{85}Kr е от порядъка на 10nSv . Тази доза е пренебрежима спрямо средно годишната ефективна доза за населението, дължаща се на естествени източници (2.4mSv) [4].

Таблица II.2: Порядък на изхвърлянията на радиоактивен ксенон от различни ядрени съоръжения и при ядрени експлозии. Таблицата е превод на таблица 4 от библ. изт. [22].

Източник на изхвърлянето	Типичен порядък на изхвърлената активност	Характерни изотопи
Болница	10^6Bq/d	^{133}Xe и ^{131m}Xe
АЕЦ	10^9Bq/d	^{133}Xe
Завод за радиофармацевтици	$10^{11}-10^{13} \text{Bq/d}$	^{133}Xe и ^{133m}Xe
1kton подземна експлозия	$0-10^{15} \text{Bq}$	^{133}Xe , ^{135}Xe и ^{133m}Xe
1kton експлозия в атмосферата	10^{16}Bq	^{133}Xe , ^{135}Xe и ^{133m}Xe

надвишават с порядъци³² тези характерни за АЕЦ (виж таблица II.2).

Измерванията на ^{85}Kr и ^{133}Xe намират приложение в области като:

- Ядрена енергетика – контрол на херметичността на горивните елементи, изследване и моделиране на механизмите за нарушаване на херметичността [20]. Контролът се осъществява на няколко етапа. При първия етап се следи активността на топлоносителя. Повишената активност говори за разхерметизиране на горивни елементи. Вторият етап цели локализиране и отстраняване на разхерметизираните елементи. Третият етап е свързан с установяване на типа и причините за повредата. Някои от повредите могат да бъдат установени и на втория етап според характерните съотношения на изотопите на РБГ [20];
- Ядрена безопасност – следене за спазването на забраната на ядрените опити [21, 22], следене за нелегално извличане на плутоний за ядрено оръжие [21], контрол на изхвърлянията от ядрени съоръжения като АЕЦ [21, 22], заводи за преработка на отработено гориво [21], заводи за производство на радиофармацевтици [22], контрол при осигуряване на достъп на плавателни съдове, задвижвани или пренасящи дялящ се материал [85]. Различните случаи, споменати тук (без последния), водят до изпускане на РБГ в атмосферата. Те се характеризират с различно съотношение между изпуснатите РБГ и това служи за разграничаване между отделните случаи. Последният случай е специфичен, т.к. потенциалното изпускане е във водна среда. При него целта е само опазване на околната среда;
- Науки за Земята – датирание, проследяване и картиране на подпочвени води [21, 86], изследване на взаимодействието океан–атмосфера, валидиране на атмосферни моде-

³²Изхвърлянията на ^{133}Xe от всички АЕЦ за една година се оценява на $0.74 \times 10^{15} \text{Bq}$, а само от четирите най-големи радиофармацевтични завода изхвърлянията на ^{133}Xe се оценяват на $11 \times 10^{15} \text{Bq}$ [22].

ли [21]. В първите два случая приложение намира само ^{85}Kr – след 40-те години на XX в. в атмосферата се натрупва достатъчно количество ^{85}Kr , за да може да бъде използван за тези цели. Освен за нуждите на хидрологията, определянето на възрастта и скоростта на възстановяване на подпочвените води, използвани за питейно-битови нужди, има отношение и към здравеопазването, т.к. при ”по-младите” води рискът от замърсяване е по-голям [86]. При валидирането на атмосферните модели се използват и двата РБГ. При това се използват известните изпускания от АЕЦ, заводи за преработка на отработено ядрено гориво, заводите за радиофармацевтици. В ядрената наука тези модели намират приложение при локализиране на източници на РБГ за целите на ядрената безопасност (виж предната точка), както и при прогнозиране на замърсявания в случай на ядрена авария;

- Медицина – изследвания на белия дроб и кръвния поток [22, 87]. Тази област е спомената само като потребител на ^{85}Kr и ^{133}Xe като радиофармацевтици и няма да бъде разглеждана по-нататък.

Методите за измерване на ^{85}Kr и ^{133}Xe могат да бъдат разделени на две групи – методи за измерване на ниски активности (активности близки до срещашите се в природата) и методи за измерване на високи активности (активности срещани се в близост до ядрени съоръжения).

II.3.1 Методи за измерване на ниски активности

Изискванията към тези методи са да позволяват измерване на активностите на ^{85}Kr и ^{133}Xe , срещани се в атмосферата ($\sim 1\text{Bq}/\text{m}^3$ за ^{85}Kr [84] и $< 1\text{mBq}/\text{m}^3$ за ^{133}Xe [22]) и на ^{85}Kr , срещани се във води ($\sim 10\text{mBq}/\text{m}^3$ ³³ [88]). Поради ниските концентрации на ^{85}Kr и ^{133}Xe , срещани се в природата, досега няма предложен метод за директно измерване. Всички методи, описани в литературата, се основават на предварително извличане на съответния РБГ от средата, в която се измерва концентрацията му. И в двата случая на измерване (във въздух или във вода), най-популярният метод за извличане е криогенното отлагане върху активен въглен при температура на течния азот. Тъй като това е метод за извличане от газова фаза, в случаите на измерване във води, по време на криогенното отлагане ^{85}Kr от голямо количество водна проба (напр. 200L [89]) се отделя в газ-носител³⁴ [89]. Атмосферният въздух (или газът-носител) се пропуска през молекулно

³³Направената оценка е само по порядък, въз основа на оценката направена от авторите на [88] за възможностите на използвания от тях метод.

³⁴Методи за извличане на ^{85}Kr от водната проба са представени в [89]: извличане при висока температура ($\sim 95^\circ\text{C}$), при ниско налягане, комбинация от двете или барботиране с He.

сито или първична криогенна уловка с цел отстраняване на CO_2 и водните пари, след което се пропуска през съда с активен въглен охладен до температура на течния азот. При това, освен криптон и ксенон, в активния въглен се задържат и други газове (напр. N_2 , Ar , O_2 [90]). След приключване на пробовземането, съдът с активния въглен може да бъде запечатан и измерен гама-спектрометрично [19] или РБГ да бъдат отделени и допълнително прекоцентрирани и измерени течност-сцинтилационно [90], с пластмасов сцинтилатор [91] или с пропорционален брояч [89]. Отделянето става чрез бавно увеличаване на температурата на активния въглен, като при достигане на характерни температури, от активния въглен се изпускат точно определени газове [90]. Прекоцентрирането и допълнителното почистване става чрез неколkokратно пропускане на пречистения вече газ през активен въглен при температура на течен азот и газ-хроматографска колона [89].

Друг метод за извличане и измерване на ^{133}Xe от атмосферата е предложен в [92]. При него извличането отново се осъществява чрез абсорбция в активен въглен и газ-хроматография. Предимството му е, че извличането се осъществява при температура на околната среда. За измерването се използва установка за бета-гама съвпадения. Установката представлява $4\text{in} \times 5\text{in}$ кристал от $\text{NaI}(\text{Tl})$ (гама-детектор), в който е пробит отвор. В отвора е поставена цилиндрична клетка от пластмасов сцинтилатор (бета-детектор) с дебелина на стената 1mm – достатъчна да спре бета-частиците на ^{133}Xe . И двете измервания са спектрометрични, което позволява разграничаване между различните изотопи на ксенон.

Представените в тази секция методи позволяват измерване на изключително ниски концентрации на РБГ. Това са сравнително скъпи методи, но безалтернативни до момента. Те намират приложение в науките за Земята и ядрената безопасност при следене за спазването на забраната на ядрените опити и нелегално извличане на плутоний. Във връзка със споразумението за забрана на ядрените опити е изградена световна мрежа за мониторинг (International Monitoring System – IMS) на ^{85}Kr и ^{133}Xe в атмосферата. Поради високата цена на системите за измерване, броят им е ограничен до няколко десетки. Намирането на алтернативни, по-евтини методи би позволило повишаване на ефективността и надеждността на световната мрежа.

II.3.2 Методи за измерване на високи активности

Методите, представени в тази секция са специфични за областите, в които се използват. Това, което ги обединява, е възможността алтернативно или паралелно с тях да бъде прилаган и поликарбонатния метод, обект на настоящата дисертация.

II.3.2.1 Поликарбонатен метод

Както при измерванията на радон, разгледани по-нагоре в тази глава, така и при измерванията на ^{85}Kr и ^{133}Xe ³⁵ се използва способността на Makrofol да абсорбира РБГ [93, 26, 73]. При този метод, поликарбонатен образец се облъчва във въздух или във вода, като по време на облъчването поликарбонатът абсорбира РБГ. След края на облъчването, активността на абсорбирания РБГ може да бъде измерена гама-спектрометрично, чрез общо бета-броене или течно-сцинтилационно броене [93, 26].

II.3.2.2 Измервания в областта ядрената енергетика

В областта на ядрената енергетика измерванията на ^{85}Kr и ^{133}Xe имат водеща роля при контрол на херметичността и изследването на механизмите за нарушаване на херметичността на горивните елементи. Тези измервания се осъществяват на три етапа, като целта, освен повишаване на безопасността на АЕЦ, е да се минимизира времето за установяване и отстраняване на разхерметизираните елементи [20].

Първият етап е следене на активността на топлоносителя. Повишаването на активността показва разхерметизиране. Контролът на активността в топлоносителя се осъществява гама-спектрометрично. Според активността и изотопния състав на РБГ може да бъде направена предварителна оценка на типа на повредата, броя повредени елементи, какво е горивото в съответния елемент (UO_2 , MOX) [20]. Това е важно, т.к. своевременно взетите мерки намаляват разходите по отстраняване на дефектиралите елементи и пречистване на топлоносителя от изпуснатата активност [20]. Гама-спектрометричните измервания на топлоносителя стават като се взема проба, измерва се с помощта на HPGe детектор и се провежда гама-спектрометричен анализ. Тук поликарбонатният метод може да намери приложение като паралелен метод. Фактът, че поликарбонатът абсорбира РБГ, може да бъде използван като се потопи поликарбоната във взетата водна проба. След като абсорбира РБГ поликарбонатът може да бъде измерен и така да бъде направен анализ само на РБГ в топлоносителя. Елиминирането на влиянието на многото други нуклиди присъстващи в топлоносителя би подобрило съществено анализа и достижимите MDAC.

Вторият етап се осъществява по време на презареждане на реактора или в басейна за отработено гориво (БОГ) и цели локализиране на разхерметизираните елементи [20]. Най-често използваният метод е сипинг тест³⁶ [20]. При него последователно всички горивни клетки³⁷ се поставят в изолиран обем при подналягане. При това, в случай

³⁵Необходимо е да се отбележи, че методът позволява измерване и на други изотопи на РБГ.

³⁶Няма превод на български, затова е възприет английският термин "sipping test"

³⁷Превод от английски "Fuel Assemble"

на нарушена херметичност, се изпускат част от натрупаните РБГ в разхерметизираните елементи. Изпуснатите газове се улавят и се измерват гама-спектрометрично. При установяване на нехерметичност горивната клетка се отделя за по-нататъшен анализ и се заменя с нова. Най-използваната разновидност на сипинг теста е ”кулата за сипинг³⁸”. При този метод, сипингът се извършва в ”кула”, която е част от машина за презареждане на реактора [20]. Основно предимство, поради което този метод е все по-използван, е възможността за он-лайн сипинг – т.е. сипинг по време на презареждане, т.к. това спестява време. Друг метод е ултразвуковото изследване. Това е най-използвания метод в САЩ преди внедряването на кулите за сипинг. Въпреки прецизността на този метод, той отстъпва по бързина, т.к. при него изследването се извършва в БОГ. При тези измервания, поликарбонатният метод също може да намери приложение. Чрез поставяне на поликарбонати в много точки в БОГ и определяне на концентрациите на РБГ може да се локализируют източниците на РБГ. Поради високите активности измерванията могат да стават бързо и прецизно, а ниската цена на поликарбонатите позволява практически неограничен брой измервания. Информацията придобита на този етап, също спомага и осъществяването на третия етап.

Третият етап се осъществява в БОГ или при по-обстойни изследвания в горещи клетки³⁹. Целта тук е изследване на типа и причините на повредата. Най-използваният метод тук е визуалното изследване. Ако той не е достатъчен, за изследванията се използват най-различни методи за изследване механичните и химичните свойства на дефектиралите елементи. Този етап има за цел осъществяване на обратна връзка към производителите на гориво и оптимизиране времето на времето на живот и степента на изгаряне на горивото, преди предаването му за преработка.

II.3.2.3 Измервания в областта на науките за Земята

В областта на науките за Земята приложение намират основно методите за измерване на ниски активности. В областта на една от тези науки обаче намират приложение и методите за измерване на високи активности. Разработването и валидирането на атмосферни модели, описващи разпределението на изхвърлянията в атмосферата в близост до ядрени съоръжения при нормална работа и в случай на авария, са от изключителна важност при оценка на замърсяването и радиологичните последици [94]. Затова още през 50-те години на ХХ век започва разработването на такива модели [94]. Първите са сравнително опростени (изхвърляне в близост до равна, земната повърхност), поради ограничение от изчислителна мощ. С увеличаване на изчислителната мощ, започва разработване на

³⁸Превод от английски ”in-mast sipping”

³⁹Превод от английски ”Hot-cell”

сложни модели, включващи изхвърляния във височина ($\sim 100\text{m}$, каквато е височината на вентилационните тръби), неравен терен с включени сгради [94, 95]. Поради големия брой параметри, влияещи на резултатите от моделите, необходимо е те да бъдат прецизно валидирани. Това изисква измерване в голям брой точки. В [95] е представено валидирането на един такъв модел в близост до завода за преработване на ядрено гориво SOGEMA La Hague, Франция. Като маркер е използван ^{85}Kr , поради големите количества, които се изхвърлят и поради химическата инертност на криптона⁴⁰. При измерванията в реално време са използвани полупроводников HPGe детектор, сцинтилационен NaI(Tl) детектор, йонизационна камера и три пропорционални брояча. Освен това са взети и проби въздух за лабораторен, гама-спектрометричен анализ. Предвид сравнително високата цена на използваната апаратура, с нея не може да се постигне едновременно измерване в много точки. Това обаче може да се постигне с поликарбонатния метод. Способността на поликарбонатите да абсорбират и задържат РБГ (и в частност ^{85}Kr) ги правят подходящи за едновременно пробовземане в голям брой точки и последователно измерване в лабораторни условия.

В случаите на големи ядрени аварии, изхвърлянията могат да засегнат цялата земна атмосфера. В следствие на настъпилата на скоро авария във Фукушима, повишени концентрации на ^{131}I и ^{137}Cs са измерени в Северна Америка и Европа [23]. Според изчисленията на няколко модела на атмосферата до Северна Америка е достигнал ^{133}Xe с концентрация няколкостотин Bq/m^3 [96]. Наличието на ^{133}Xe по западното крайбрежие на Северна Америка беше потвърдено от две публикации [24, 25], но максималните измерени концентрации са $30\text{-}70\text{Bq}/\text{m}^3$ [24, 25]. Тази разлика се дължи на параметрите заложи в модела, като важна роля играе силата на източника. IMS станцията⁴¹ в Такасаки, Япония (разположена на около 300km от Фукушима) е регистрирала наличие на ^{133}Xe , но за съжаление, поради пригодността на станцията за измерване ниски активности, няма данни за високите концентрации по време на аварията [24]. Въпреки че такива събития са рядкост, поликарбонатния метод би намерил изключително приложение в такива случаи, както в близост до източника, така и на големи разстояния. В случаите в близост до източника измервания могат да бъдат направени дори без предварителна подготовка – предпоставка за това е широкото разпространение на CD/DVD и фактът че поликарбонатът, от които се произвеждат CD/DVD, абсорбира РБГ. При измерванията на големи разстояния: Оцен-

⁴⁰Химическата инертност на криптона гарантира проследяване само на физичните процеси на транспорт.

⁴¹International Monitoring System (IMS) – Международната Система за Наблюдение е мрежа от станции, оборудвани за измерване на много ниски концентрации на ^{133}Xe ($\text{MDAC} < 1\text{mBq}/\text{m}^3$) [22]. Системата е изградена за следене за спазването на забраната на ядрените опити.

ката на MDAC на поликарбонатния метод за ^{133}Xe е $\text{MDAC} \sim 130 \text{Bq/m}^3$ [97]. За сравнение, концентрациите измерени по западното крайбрежие на Северна Америка са $30\text{-}70 \text{Bq/m}^3$ [24, 25], като разстоянието от Фукушима е приблизително 7000km.

II.3.2.4 Измервания в областта на ядрената безопасност

В областта на ядрената безопасност, методите за измерване на високи активности намират приложение при контрол на изхвърлянията от ядрени съоръжения [21, 22] и при осигуряване на достъп в пристанища на плавателни съдове задвижвани или пренасящи дялящ се материал [85]. При контрол на работата на ядрени съоръжения (АЕЦ и заводи за преработка на ядрено гориво), ^{85}Kr и ^{133}Xe са ключови нуклиди при докладване на изхвърлянията [98, 99]. Поради това тези съоръжения е необходимо да бъдат снабдени със системи за мониторинг на изхвърлянията. Системите за мониторинг на изхвърлянията от АЕЦ [100] се инсталират на вентилационните тръби, където част от въздушния поток се пропуска през системата за мониторинг. Преди да достигне частта от системата следяща РБГ, въздухът минава през аерозолни и йодни филтри и камера с детектор от $\text{NaI}(\text{Tl})$ за измерване на общата гама-активност, които също са част от системата за мониторинг. Частта от системата, отговаряща за измерване на изхвърлянията на РБГ, представлява камера с полупроводников HPGe детектор. Измерванията на РБГ са интегрални с продължителност 6h. Тук поликарбонатният метод може да бъде използван за паралелни измервания. Тъй като това е пасивен метод, при него няма необходимост от хранване и постоянна поддръжка. Ниската цена на поликарбонатите позволява те да бъдат поставяни в произволен брой други места в АЕЦ, където е необходимо да се следят нивата на РБГ.

В рамките на международно споразумение за колективна защита, страните от споразумението е необходимо да осигуряват достъп на военноморски плавателни съдове задвижвани от ядрени реактори и/или пренасящи ядрено оръжие. За да се предотврати рискът за здравето на населението и персонала, както и рискът от замърсяване на околната среда, в Канада са въведени норми и мерки за следене на активността на различни радионуклиди в морската вода при посещение на такива плавателни съдове в регламентирани пристанища [85]. Измерванията на активност във водата се осъществяват чрез пробовземане и гама-спектрометричен анализ в лабораторни условия. След анализа на пробите, активността се докладва по изотопно, като е включена и активността на РБГ. Поради лесното дегазиране на РБГ от водата, измерената във водата активност се докладва като минимална. Паралелното използване на поликарбонатния метод би позволило точното определяне на активността на РБГ, елиминирайки влиянието от пробовземането.

Въпреки разнообразието от области, в които се налагат измервания на РБГ и

специфичните изисквания към методите за измерване, поликарбонатния метод може да намери приложение в голяма част от тези области като съпътстващ или алтернативен на вече съществуващите методи. Възможността за различни начини на прилагане (ецване и броене на следи от α -частици за радон, γ -спектрометрия, β -броене, течно-сцинтилационни измервания за криптон, ксенон и радон) в различни среди (въздух, вода), в някои случаи правят този метод дори по-добър от вече съществуващите. Затова, една от целите на настоящата дисертация е развитие на поликарбонатния метод във варианта му, при който се регистрира β - или γ -лъчението на РБГ (Глава IV).

Глава III

Развитие на метода на дифузионните камери за кумулативни измервания на ^{222}Rn

Методът на дифузионните камери е един от най-често използваните за кумулативни измервания на ^{222}Rn . Дифузионните камери представляват съд (камера), в който по дифузионен път прониква ^{222}Rn , като същевременно не се позволява проникването на ^{220}Rn и краткоживеещите продукти на разпадане (КПР) на ^{222}Rn и ^{220}Rn . В камерата най-често е поставен твърдотелен детектор на следи (Solid State Nuclear Track Detector – SSNTD). Дифундиралият в камерата ^{222}Rn и генерираните при разпадането му КПР ^{218}Po и ^{214}Po търпят алфа-разпадане, като получените алфа-частици формират следи в SSNTD. Характерните размери на тези следи са до няколко десетки нанометра. След края на облъчването, SSNTD се подлага на подходяща химична обработка, при която размерът на следите се увеличава и те могат да бъдат преброени. След преброяването се определя плътността на следите (брой следи на единица площ на детектора). ”Чистата” плътност на следите s_0 (плътност на следите коригирана с фон) е пропорционална на интегрираната по времето на облъчване обемна активност на ^{222}Rn I_A

$$s_0 = kI_A \quad (\text{III.1})$$

където k е калибровъчния коефициент. Интегрираната по времето обема активност на радона се дава с израза:

$$I_A = \int_0^{t_{exp}} A_V(t) dt \quad (III.2)$$

където $A_V(t)$ е обемната активност на радона интегрирана по времето на облъчване t_{exp} . При такива измервания, величината, която се определя, е средната обемна активност \bar{A}_V :

$$\bar{A}_V = \frac{I_A}{t_{exp}} \quad (III.3)$$

От изрази III.1 и III.3 се получава изразът, свързващ "чистата" плътност на следите и средната обемна активност на радона за времето на облъчване:

$$\bar{A}_V = \frac{1}{k} \frac{s_0}{t_{exp}} \quad (III.4)$$

От израза III.4 се вижда, че за да бъде точно определена средната обемна активност на радона за времето на облъчване на дифузионните камери, трябва да може плътността на следите да бъде определяна с малка неопределеност, както и да бъде добре известен калибровъчният коефициент. Затова, задачите, които се решават в следващите части, с цел развитие на метода на дифузионните камери, са:

1. Разработване и валидиране на метод за автоматично броене на следи в SSNTD;
2. Калибриране на дифузионни камери и изследване зависимостта на калибровъчния коефициент от конструктивните особености на камерите.

III.1 Разработване и валидиране на метод за автоматично броене на следи в SSNTD¹

Поради широкото приложение на SSNTDs, различни методи се разработват и прилагат за броене на химически ецвани следи. Тези методи могат да се разделят на два типа: "ръчно"(визуално) и автоматично. Визуалните методи (такива, при които следите се броят от оператор – напр. визуално броене с оптичен микроскоп в преминала светлина, ръчно маркиране на следите върху изображение на детектора, проектирано върху хария и т.н.) по правило са много времеемки, натоварващи оператора и зависими от него. От друга страна, автоматичното броене е препятствано от сравнително малките размери на химически ецваните следи в широко използваните SSNTDs. Един от широко използваните подходи

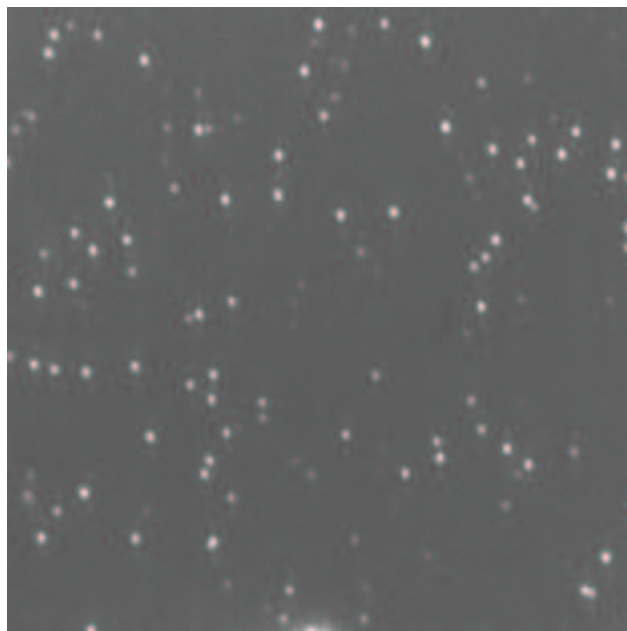
¹Резултатите, представени в тази секция, са публикувани в библ. изт. [44]

включва автоматичен оптичен анализ на образа с помощта на сканираща система с оптичен микроскоп [35]. Този подход не отнема много по-малко време от визуалното броене, т.к. обикновено трябва да бъдат преброени повече от едно поле, като за всяко поле изображението трябва да се фокусира наново. Инструменти за анализ на изображения като Quantimed 720 и Leitz-TAS също се използват за броене на следи [36]. Използват се и методи базирани на фотометрия [39] или нарушаване на пълното вътрешно отражение (ПВО) [101, 43]. Прилагането на подходът, използващ фотометрия е ограничено само за случаи на висока плътност на следите. Методът, базиран на нарушаване на ПВО, изисква специално проектирана система и прецизно позициониране на всеки изследван детектор.

С развитието на микроелектрониката се появиха и станаха широко достъпни компютърни скенери с разделителна способност от порядъка на няколко микрона. Тази разделителна способност позволи разработването на метод за визуализация и високо продуктивно автоматично броене на химически ецвани следи в SSNTD с помощта на компютърен скенер [44]. Първите ни експерименти показаха, че ако повърхността на химически ецван SSNTD бъде сканирана с такъв скенер, то на полученото изображение ецваните следи са видими. Полученото изображение може да бъде запазено и следите да бъдат преброени автоматично с подходящ софтуер. За целта беше разработен такъв софтуер и потенциалът на този подход беше изследван в серии експерименти с два скенера и два вида SSNTDs.

Първоначално този подход беше изследван за детектори Kodak-Pathe LR-115/II (Kodak-детектори). Тези SSNTD са широко използвани при изследване на концентрациите на радон включително и в България [50]. Kodak-детектори бяха поставени в дифузионни камери и облъчени при измервания на ^{222}Rn в околната среда. След облъчването, детекторите бяха ецвани химически за 120min с 10% разтвор на NaOH при температура 60°C. След това бяха измити с течаща вода за 30min и бяха поставени в 50% разтвор на етилов алкохол за 2min. Плътността на следите беше определена чрез визуално броене на няколко полета с оптичен микроскоп в режим на преминала светлина. Детекторите бяха сканирани в преминала светлина със скенер EPSON Perfection 1650 Photo scanner с пространствена разделителна способност 1600×1600dpi и 24-bit RGB цвятова разделителна способност. В резултат следите се проявяват като бели петна на тъмно червен фон, което спомага за визуализирането и броенето (фигура III.1). Изображенията бяха запазени в RGB bitmap-формат, при който се съхраняват стойностите на интензитетите на трите цветни компоненти за всеки пиксел от изображението, без да се прилага компресиране. Съхраняването в този формат беше важно за успешното прилагане на алгоритъма за броене на следите.

Фигура III.1: Скенерно изображение на твърдотелен детектор на следи Kodak-Pathe LR-115/II след химическо ецване. Следите се проявяват като бели петна на червен фон. За да се виждат по-добре следите на фигурата, изображението е допълнително обработено. При автоматичното броене, изображението не се обработва предварително.



За броене на следите беше специално разработен компютърен код, изпълняващ следните основни стъпки:

1. От RGB bitmap изображението се анализира само зелената компонента, тъй като за нея контраста между следите и фона е най-добър;
2. За цялото изображение се определя средната стойност I_{avg} и стандартното ѝ отклонение $\sigma(I_{avg})$ на интензитетите на пикселите, формиращи изображението с цел да се оцени фона:

$$I_{avg} = \frac{1}{M} \sum_{j=1}^M I_j \quad (\text{III.5})$$

и

$$\sigma(I_{avg}) = \sqrt{\frac{\sum_{j=1}^M (I_{avg} - I_j)^2}{M(M-1)}} \quad (\text{III.6})$$

където I_j е интензитета на j -тия пиксел, а M броя на всички пиксели, формиращи изображението;

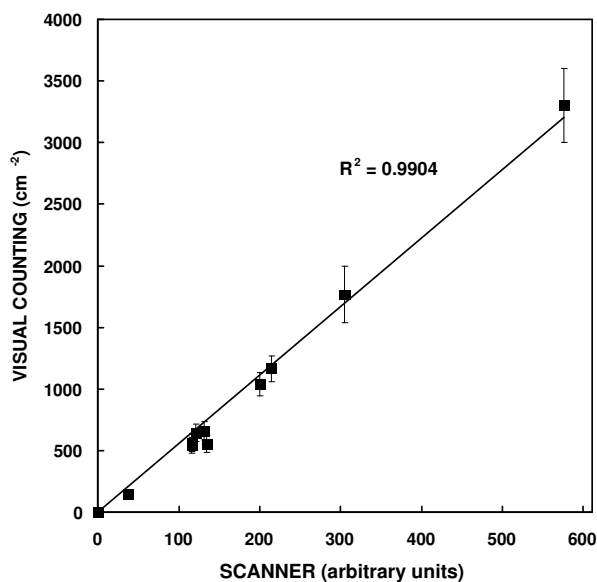
3. Определя се прагова стойност на интензитета I_{thold} на базата на определения фон и стандартното му отклонение

$$I_{thold} = I_{avg} + k_{thold}\sigma(I_{avg}) \quad (\text{III.7})$$

където k_{thold} е константа, която се задава предварително;

4. Всички пиксели от изображението се сравняват с праговата стойност и се запомнят тези с интензитет над праговия. Алгоритъмът се връща в стъпка 2 като от пресмятането се изключват пикселите с интензитет над праговия. Получената нова стойност на I_{avg} се сравнява със старата и се намира разликата им. Цикълът се повтаря докато разликата стане по-малка от дадена стойност. След това групите от съседни пиксели с интензитет по-голям от прага се обединяват и преброяват като следа.

На фигура III.2 е представена зависимостта на автоматично определените плътности на следите от визуално определените плътности на следите. Както се вижда, има много добра корелация между резултатите от визуалното и автоматичното броене.



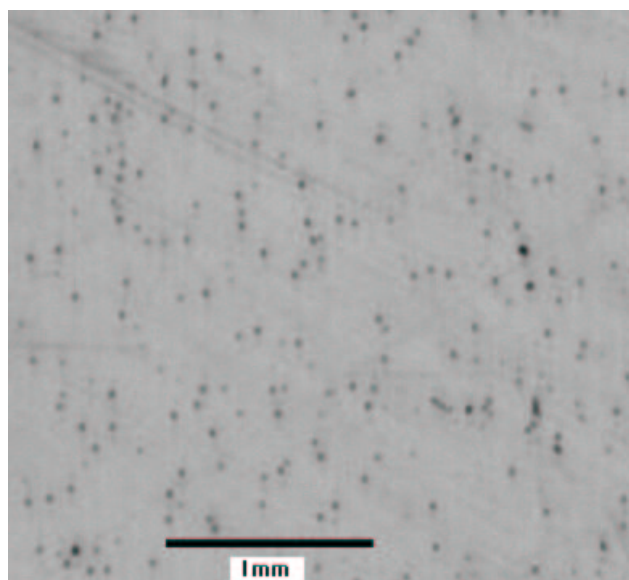
Фигура III.2: Корелация между автоматично и оптично преброените следа в твърдотелни детектори на следа Kodak-Pathe LR-115/II след химическо ецване. При автоматичното броене е използван описаният в тази секция алгоритъм. С точки са представени плътностите на следите за всеки от детекторите, преброени автоматично и оптично, като дадените неопределеностите са на ниво 1σ . Експерименталните точки са фитирани с права, по метода на най-малките квадрати.

При прилагане на метода на дифузионните камери, в някои случаи се налага облъчванията да бъдат кратковременни. Тогава плътността на следите, дължаща се на облъчването може да е сравнима с фоновата плътност на детекторите. В такива случаи е необходимо да се определи минималната плътност на следите, която може статистически да се различи от фона. За да се оцени работата на алгоритъма за автоматично броене в такива случаи, беше проведен следният експеримент: определена беше плътността на следите на необлъчен Kodak-детектор (фоновата плътност) посредством визуално и автоматично броене. Получената с автоматичното броене плътност на следите (35 ± 8) cm⁻² е в добро съответствие с тази, получена чрез визуално броене (37 ± 7) cm⁻² (неопределеностите са дадени на ниво едно стандартно отклонение). На базата на това можем да заключим, че компютърен скенер с разделителна способност 1600×1600dpi или по-добра може да бъде използван за автоматично броене на следа в Kodak-Pathe LR-115/II детектори, при наличие на подходящ софтуер.

Другият тип SSNTD, за който изследвахме приложимостта на гореописания алгоритъм, беше поликарбонатно фолио Makrofol. Този тип детектори също са широко използвани при изследване на концентрациите на радон. Освен това, от този материал се произвеждат широко използваните CD и DVD и на базата на това е разработен метод за точни ретроспективни измервания на радон, при който също се разчита на свойството на този материал на SSNTD [15].

За разлика от случая на Kodak-детекторите, опитите да видим химически ецвани следи в Makrofol детектори при сканиране в преминала светлина се оказаха неуспешни. Това се дължи на факта, че Makrofol детекторите са прозрачни за видимата светлина. При сканиране на детектора в преминала светлина, тя се разсейва при преминаване през детектора и размива границите между следите и останалата част от детектора. Поради това и поради малките размери на химически ецваните следи (сравними с разделителната способност на скенера), те не могат да бъдат отделени от фона. Затова опитахме няколко подхода за визуализиране на следите при сканиране в отразена светлина, два от които се оказаха успешни (фигура III.3). И двата подхода се основават на два факта: неравната повърхност на следите силно отразява светлината; докато чистата от следи повърхност на детектора е гладка и слабо отразява светлината при сканиране, светлината навлиза в детектора и поради това, че задната повърхност на Makrofol фолиото е матова, светлината се отразява дифузно от нея. Идеята и на двата подхода за визуализация е да се намали интензитета на отразената от задната повърхност светлина.

Фигура III.3: Скенерно изображение на твърдотелен детектор на следи Makrofol след химическо ецване. Следите се проявяват като бели петна на черен фон. За да се виждат добре следите, на фигурата е показано негативно изображение.



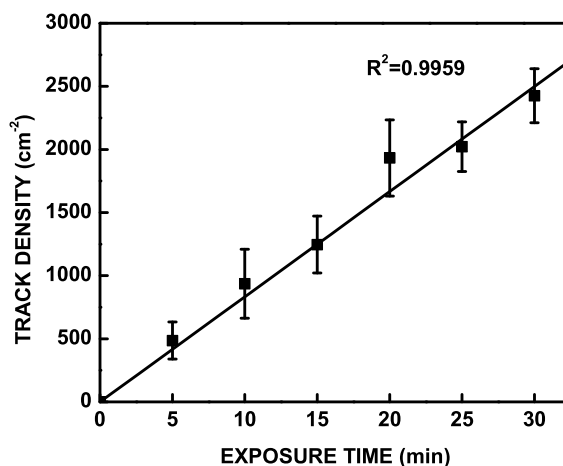
При единият подход това беше постигнато лесно, като задната повърхност на детектора беше оцветена в черно със спрей черна боя. В този случай, когато светлината достигне задната повърхност, тя се поглъща от слоя боя. Недостатъкът на този подход е,

че веднъж боядисан, той не може повече да бъде изследван визуално с оптичен микроскоп в преминала светлина.

При другият подход на гърба на детектора се поставя черно стъкло, като между детектора и стъклото се нанася "оптическа смазка", за да се съгласуват двете среди по показател на пречупване. По този начин се намалява отражението на границата стъкло-детектор. Тогава, светлината достигаща задната повърхност на детектора преминава в черното стъкло и се поглъща. Въпреки че този подход позволява след сканиране детектора да бъде отново изследван визуално, той има някои други недостатъци. Например при нанасяне на "оптическата смазка" – в нашия случай глицерин, често се получават мехурчета, което не се вижда преди сканиране и детектора трябва да се сканира наново. Друг проблем е, че при нанасяне на по-голямо количество глицерин, той може да потече и да замърси повърхността на скенера. Изброените предимствата и недостатъците не доведоха до избор на предпочитан подход, затова и двата бяха използвани за визуализация на следите.

За да проверим дали следите в Makrofol могат да бъдат броени надеждно след сканиране и прилагане на алгоритъма за автоматично броене, беше проведен следният експеримент: лист от Makrofol фолио беше облъчен с алфа-частици от спектрометричен източник ^{241}Am . Майлър с дебелина $12\mu\text{m}$ беше поставен между източника и детектора с цел да намали енергията на алфа-частиците до енергийния диапазон на чувствителност на Makrofol детектора. Бяха приготвени различни плътности на следите чрез вариране на времето за облъчване. Облъчените детектори бяха ецвани с PEW разтвор (15% KOH + 45% вода + 40% етанол) [102] при 70°C за 120min. След ецването детекторите бяха измити с вода и внимателно почистени с мека кърпа напоена с етанол. След това задната повърхност на детекторите беше оцветена в черно. Облъчената им повърхност беше сканирана в отразена светлина със EPSON Perfection 3170 Photo scanner при разделителна способност $3200\times 3200\text{dpi}$. Плътността на следите беше определена с гореописания компютърен код. Наблюдаваната много добра корелация между плътността на следите и съответните времена за облъчване (фигура III.4) ни позволява да заключим че предложения алгоритъм може успешно да бъде приложен и за автоматично броене на химически ецвани следи в Makrofol детектори.

Фигура III.4: Корелация между време на облъчване с алфа-частици и автоматично преброените следи в твърдотелни детектори на следи Makrofol след химическо ецване. При автоматичното броене е използван описаният в тази секция алгоритъм. С точки са представени плътностите на следите за всеки от детекторите за съответното време на облъчване, като дадените неопределеностите са на ниво 1σ . Експерименталните точки са фитирани с права, по метода на най-малките квадрати.



III.2 Калибриране на дифузионни камери и изследване зависимостта на калибровъчния коефициент от конструктивните особености на камерите²

За да бъде приложен методът за автоматично броене на следи в SSNTD от дифузионни камери, беше необходимо да се определи връзката между плътността на следите определена при автоматичното броене и осреднената за времето на облъчване обемна активност на радона (т.е. калибровъчния коефициент виж III.4). За целта беше проведено калибриране, при което два вида дифузионни камери бяха облъчени за определено време при известна обемна активност на радон [103].

Единият вид дифузионни камери са рутинно използвани в нашата лаборатория при изследване на концентрациите на радон. Те представляват пластмасова чаша на дъното на която е прикрепен SSNTD като отворът ѝ е покрит с полиетиленово фолио (фигура III.5). Целта на полиетиленовото фолио е по дифузионен път да пропусне в обема на камерата само ^{222}Rn и да спре КПП както и ^{220}Rn и неговите КПП. SSNTD използван при дифузионните камери е Kodak-Pathe LR115/II, който е прикрепен с тиксо за дъното на чашката. Пластмасовите дифузионни камери са калибрирани за визуално броене с първичен радонов стандарт през 1999 в CEA – Saclay, France [104].

Другият вид дифузионни камери са метални и бяха разработени поради някои техни предимства пред пластмасовите камери. Металните дифузионни камери представляват цилиндрична метална кутия с няколко отвора и метален капак (фигура III.5). Отворите са покрити с полиетиленово фолио и парче плат, целта на което е да предпази

²Резултатите, представени в тази секция, са публикувани в библ. изт. [103]



Фигура III.5: Снимки на пластмасова (ляво) и метална (дясно) дифузионна камера.

фолиото от пробиване от стружки около отворите. От вътрешната страна на капака е поставен X-образен държател, в който лесно може да бъде поставен SSNTD. Предимствата на метални дифузионни камери пред пластмасовите са:

- Натрупването на статично електричество по стените при пластмасовите дифузионни камери води до вариации в калибровъчния коефициент от порядъка на 15% [105, 106]. Този проблем се елиминира при металните камери, т.к. техните стени са проводящи.
- Металните камери могат да бъдат използвани многократно като лесно и бързо се приготвят за повторна употреба – детекторът се поставя в държателя и капакът се затваря. При подготовка на пластмасовите камери за повторна употреба, детекторът трябва да се центрира и залепи за дъното и отвора на камерата трябва да се покрие с полиетиленово фолио;
- За разлика от пластмасовите дифузионни камери, металните са по-здрави и трудно могат да бъдат случайно повредени по време на облъчването. Това е особено важно при измервания в почвен газ, при които камерата се заравя в почвата за известно време, след което отново се изравя. При това пластмасовите камери често биват унищожавани при поставянето или при ваденето;
- По време на облъчването слънчевата светлина може лесно да достигне детектора

Таблица III.1: Описание на металните дифузионни камери по брой отворите и начина на покриване на отворите

Дифузионна камера No	Брой отвори
J11	без отвори
J12	без отвори
J13	1 отвор покрит отвътре с полиетилен и тъкан
J14	1 отвор покрит отвътре с полиетилен и тъкан
J15	3 отвора покрити отвътре с полиетилен и тъкан
J16	3 отвора покрити отвътре с полиетилен и тъкан
J17	3 отвора покрити отвътре само с полиетилен
J18	3 отвора покрити отвътре само с полиетилен
J19	18 отвора покрити отвън само с полиетилен *
J20	3 големи отвора покрити отвътре с полиетилен и тъкан *
J21	1 отвор на дъното покрит отвътре с полиетилен и тъкан

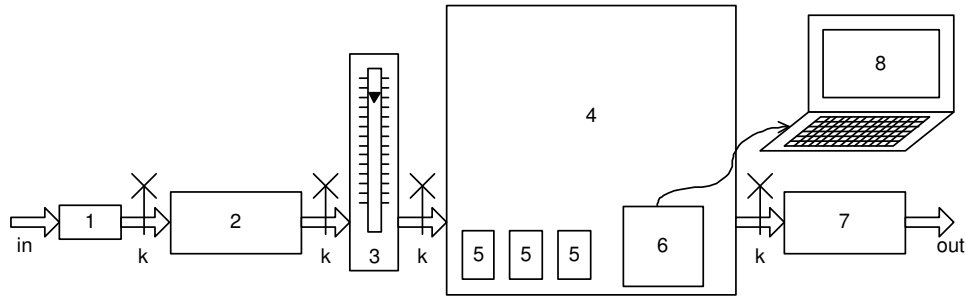
* площта на 18-те отвора е равна на тази на 3-те големи отвора

в пластмасовата камера и т.к. Kodak-детекторите са чувствителни към слънчева светлина, те често биват частично или напълно увреждани по време на облъчването. Този проблем е елиминиран с металните камери.

За калибрирането бяха използвани 10 пластмасови камери, номерирани от J1 до J10 и 11 метални камери номерирани от J11 до J21. За да се изследва ефекта на броя на отворите на металните камери върху калибровъчния коефициент, бяха направени камери с различен брой отвори, както е описано в таблица III.1.

Фоновата плътност на следите беше определена, като няколко детектора от същата партида, от която бяха поставени в камерите, бяха оставени необлъчени. По-нататък, те бяха обработени заедно с облъчените детектори.

За облъчването на камерите беше използвана опитната установка показана на фигура III.6. Отделните компоненти са свързани в отворена система с маркучи, осигуряващи херметичност на системата по отношение на въздух и радон. Дифузионните камери заедно с радонов монитор AlphaGUARD PQ 2000 PRO са поставени в херметичен радонов бокс. Отворената система позволява в бокса да бъде създадена постоянна обемна активност на радон. Това става като в системата е включен сертифициран радонов източник и с помпа с регулируем дебит се осигурява постоянен въздушен поток през системата. При условие, че в началото в системата няма наличен радон, активността на радона в



Фигура III.6: Схема на опитната установка, използвана за калибриране на дифузионните камери. 1. изсушителен патрон; 2. източник на ^{222}Rn ; 3. ротаметър; 4. херметичен радонов бокс; 5. дифузионни камери; 6. радонов монитор AlphaGUARD PQ 2000 PRO; 7. помпа; 8. компютър, записващ данните от измерванията на радоновия монитор; к. кранове, позволяващи херметично прекъсване на връзката между отделните компоненти в опитната установка. Постоянният дебит през източника, контролиран с ротаметъра, гарантира постоянна обемна активност на ^{222}Rn в радоновия бокс (формула III.10). Обемната активност на ^{222}Rn в бокса се контролира непрекъснато чрез периодични дискретни измервания с радонов монитор AlphaGUARD PQ 2000 PRO, които се записват от компютър. Помпата, осигуряваща постоянен дебит в системата, е свързана непосредствено преди изхода като по този начин осигурява подналягане в системата. По този начин се гарантира, че при нарушаване херметичността на системата, в помещението, където се провежда облъчването, няма да бъде изпуснат ^{222}Rn .

системата $A(t)$ се дава с израза:

$$A(t) = \frac{\lambda E A_0 V}{Q} (1 - e^{-\frac{Q}{V}t}) \quad (\text{III.8})$$

където λ е константата на разпадане на радона, A_0 е активността на ^{226}Ra (който генерира ^{222}Rn в източника), E е еманационната способност на източника (броят радонови атоми, отделени от източника във въздушния обем отнесени към пълния брой генерирани радонови атоми), t е времето изминало от включване на помпата, Q е дебита на помпата, а V е обемът на радоновия бокс (т.к. обема на бокса е много по-голям от този на останалите компоненти, техният обем е пренебрегнат). От израза се вижда, че след достатъчно дълго време t_{eq} в системата се достига равновесие и обемната активност на радона става постоянна. Условието за достигане на равновесие е експоненциалният член да стане много по-малък от единица или:

$$t_{eq} \gg \frac{Q}{V} \quad (\text{III.9})$$

Равновесната обемна активност $A_V(t)$ на радона в бокса се дава с израза:

$$A_V(t) = \frac{\lambda E A_0}{Q} \quad (\text{III.10})$$

Условията и времето за облъчване бяха подбрани, така че времето за облъчване да отговаря на условието III.9. По този начин активността в системата по време на експеримент може да бъде контролирана по два независими начина: първи – чрез постоянни измервания с радоновия монитор, поставен в радоновия бокс; и втори – чрез задаване на постоянен дебит на помпата и контрол периодичен контрол на дебита чрез ротаметър. Върху условията на облъчването беше наложено още едно условие: интегрираната по времето на облъчване обемна активност на радона да осигури такъв брой следи, че да се минимизира статистическата неопределеност на плътността на следите като същевременно не се достига насищане на детекторите. Тази стойност беше оценена на базата на опита ни с пластмасовите дифузионни камери.

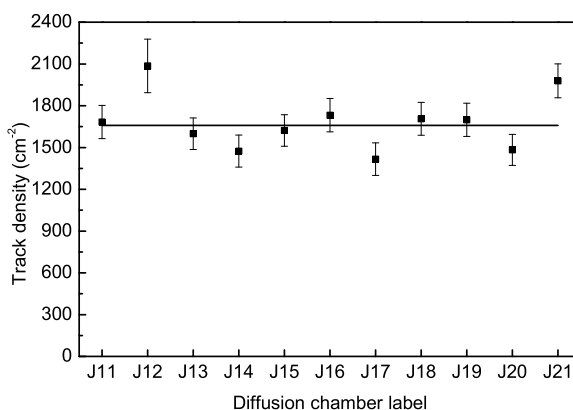
Таблица III.2: Средна стойност и стандартно отклонение на температурата T , налягането на въздуха p и влажността на въздуха H в радоновия бокс по време на калибрирането

Величина	Стойност
T °C	23.2 ± 0.4
p , mbar	934.8 ± 1.9
H , %	52.3 ± 1.7

Изпълняването на горните условия доведе до облъчване на дифузионните камери при равновесна обемна активност на радона (11.39 ± 0.60)kBq/m³ за 77 часа. Интегрираната по времето на облъчване обемна активност на радона беше (873 ± 46)kBq.h/m³. Температурата T , налягането на въздуха p и влажността на въздуха H в радоновия бокс (табл. III.2) също бяха следени, като фактори оказващи влияние върху преминаването на радон през полиетиленовата мембрана. Измерените с AlphaGUARD стойности (табл. III.2) са близки до типичните за жилищни и работни помещения.

След облъчването детекторите бяха ецвани, следвайки процедурата описана в част III.1. Следите бяха броени визуално и автоматично. При автоматичното броене бяха използвани две компютърни програми, едната от които ("Track04") беше описаната в част III.1, а другата ("DGTrack") беше по-късно разработена за целите на автоматичното броене на електрохимично ецвани следи в Makrofol детектори [59].

При визуалното броене беше използван микроскоп Nikon Eclipse E200. За всеки от детекторите бяха броени следите на най-малко 40 различни полета с площ 1.89×10^{-3} cm⁻² всяко и за всеки детектор беше определена средната плътност на следите и стандартното



Фигура III.7: Плътност на следите за детекторите в металните дифузионни камери, определена чрез оптично броене. Дадените неопределеностите са на ниво 1σ . Линията представлява средната стойност на плътността на следите, определена по детекторите от всички метални камери. Камерите са подредени по нарастване на общата площ на отворите. Както се вижда, не се наблюдава зависимост на плътността на следите от площта на отворите.

и отклонение. На фигура III.7 са представени плътностите на следите за металните камери, определени чрез оптично броене. Както се вижда не беше наблюдавана зависимост на плътността на следите от броя и размерите на отворите. Това позволява използване камери без отвори, което осигурява лесна възпроизводимост при изработването на металните камери като същевременно ги прави по-надеждни от гледна точка на повреждане и разхерметизация по време на измерване.

Процедурата по автоматичното броене следваше три основни стъпки. Първо, детекторите бяха поставени върху скенера. Второ, с помощта на софтуера на скенера бяха избрани и сканирани няколко полета от повърхността на детектора с площ 0.1cm^{-2} и изображенията бяха запазени на твърдия диск на компютъра. Трето, следите в изображенията бяха преброени независимо с двете програми, при стандартно зададени настройки на програмите. След приключване на броенето на всяко изображение, и двете програми създават текстов файл, съдържащ различни детайли свързани с броенето, в това число брой преброени следи, площ на полето и плътност на следите. След това беше определена средната плътност на следите за всеки от детекторите и за всяка от програмите за броене. Сканирането на няколко малки полета, а не едно голямо (при стъпка 2) беше направено за да се изследва дали следите са равномерно разпределени по повърхността на детектора. Такава зависимост не беше наблюдавана. Това позволява сканиране на голямо поле от детектора без съображения за избора на позицията и размерите му спрямо повърхността на детектора. По този начин се улеснява и ускорява процеса на сканиране и се осигурява

по-добра статистика при преброяване на следите.

Таблица III.3: Калибровъчни коефициенти за пластмасови и метални дифузионни камери при визуално броене и автоматично броене с програмите Track04 и DGTrack. Неопределеностите посочени в таблицата са ниво едно стандартно отклонение.

Режим на броене	Пластмасови камери k (cm ⁻² h ⁻¹ kBq ⁻¹ m ³)	Метални камери k (cm ⁻² h ⁻¹ kBq ⁻¹ m ³)
Визуално	2.41±0.15	1.90±0.12
Track04	1.50±0.09	1.11±0.07
DGTrack	1.55±0.10	1.14±0.07

Определените плътности на следите бяха използвани за да се определят калибровъчните коефициенти за двата типа дифузионни камери за трите режима на броене (един визуален и два автоматични), като резултатите са представени в таблица III.3. Неопределеността на всички калибровъчни коефициенти е по-добра от 10%, като се наблюдава добро съответствие между двата алгоритъма за автоматично броене. Въпреки че калибровъчните коефициенти за автоматично броене са по-малки от тези за визуално броене, това не влошава значително чувствителността на метода. За сметка на това, автоматичното броене позволява по-бързо и независимо от оператора определяне на концентрациите на радон. Калибрирането на металните дифузионни камери позволява използването им при измервания на радон, което осигурява по-добра надеждност при измерванията.

Глава IV

Поликарбонатен метод за измерване на бета-радиоактивни благородни газове

Поликарбонатният метод за измерване на РБГ се основава способността на някои поликарбонати да абсорбират благородни газове. Първоначално, тази способност е забелязана за радон и е посочена като източник на грешка при измервания на радон, при които SSNTD са поставени в държатели от такъв поликарбонат¹ [58]. Когато забелязват това, Мюге и съавтори изследват също и някои поликарбонатни SSNTD като потенциални източници на грешка. При изследваният забелязват, че обемната активност на радон абсорбиран в SSNTD с дебелина 0.3mm произведени от Lupilon² е осем пъти по-голяма от обемната активност, при която са облъчени. За сравнение, в CR-39 (друг поликарбонатен SSNTD) със сходни размери, обемната активност е 6% от външната.

На базата на способността на Makrofol да абсорбира радон и на свойството на този материал на SSNTD, Пресиянов и съавтори предлагат метод за прецизни ретроспективни измервания на радон [15, 107, 108, 60, 109]. В основата на метода стои фактът, че широко използваните CD/DVD се произвеждат от този материал. Тъй като в по-голямата част от жилищата и работните помещения се намират CD/DVD, то те могат да бъдат използвани за определяне на средната обемна активност на радона за времето, за което са били в помещението: Когато CD/DVD се намира в радон-съдържаща среда, поликарбонатният материал абсорбира радон от средата, като концентрацията на абсорбирания

¹След кратковременни калибровъчни облъчвания, детекторите заедно с държателите се затварят в херметични опаковки. Абсорбираният в държателите радон десорбира в обема на опаковката и допълнително облъчва детекторите. За конкретните условия, приносът на това облъчване е оценен на 10% [58].

²Lupilon и Makrofol са търговски наименования на поликарбонатни материали синтезирани на базата на поликарбоната Бисфенол-А. Makrofol® (запазена марка на Bayer) е суровина за производството на масово използваните CD и DVD.

радон е пропорционална концентрацията в околната среда. Абсорбираният радон по дифузионен път се разпределя в дълбочина на диска като същевременно се разпада. Получените при разпадането КПП остават фиксирани на мястото на генерирането си и също се разпадат. Радон и генерираните при разпадането му КПП (^{218}Po и ^{214}Po) търпят алфа-разпадане, при което техните алфа-частици формират следи в материала на диска. Плътноста на тези следи на дадена дълбочина под повърхността на диска е пропорционална на интегрираната по времето на облъчване на диска обемна активност на радона на мястото, където е съхраняван диска. След подходяща химична обработка, следите стават видими и могат да бъдат преброени. По плътността на тези следи (брой следи на единица площ) може да се определи средната обемна активност на радона.

През 2004г. Пресиянов и съавтори установяват, че Makrofol притежава висока абсорбционна способност и за други благородни газове и предлагат метод за измерване на ^{85}Kr и ^{133}Xe във въздух [26]. При тези измервания, поликарбонатът се използва за "вземане на проба" от дадения РБГ, като се облъчва за известно време във въздушна среда, съдържаща ^{85}Kr или ^{133}Xe . След това, чрез общо-бета броене или гама-спектрометрия, се измерва сигналът от разпадането на абсорбирания РБГ и измереният сигнал се свързва с концентрацията на РБГ, при която е облъчен поликарбонатът.

По-късно, Пресиянов и съавтори показват, че високата абсорбционна способност на Makrofol може да бъде използвана успешно за измервания на концентрацията на радон във води [16]. При тези измервания се използва подход подобен на този за измерване на ^{85}Kr и ^{133}Xe във въздух: Поликарбонатът се потапя за известно време във водата, при което абсорбира от радона съдържащ се в нея. След това се измерва чрез общо-бета броене или гама-спектрометрия сигналът от разпадането на КПП на абсорбирания радон. Наскоро, от Димитрова и съавтори беше показано, че поликарбонатния метод, във варианта при който се използват свойствата на Makrofol на SSNTD, може да се използва за измерване ^{222}Rn във води, както и за ^{226}Ra във води след настъпване на "веково" равновесие между ^{226}Ra и ^{222}Rn [13].

Предвид изложеното дотук състояние на поликарбонатния метод, възниква въпросът: Приложим ли е методът и за други РБГ (освен радон), разтворени във вода. Друг съществен въпрос е свързан с количественото описание на разпределението на РБГ в поликарбонатните образци. Такова описание ще позволи измерената абсорбирана активност на РБГ в поликарбоната да бъде директно свързана с концентрацията на РБГ в облъчващата среда, т.е. прилагане на метода при различни условия, ограничени основно от възможността за измерване на абсорбираната активност. Освен това ще даде възможност за оптимизиране на условията на измерване – време на облъчване и измерва-

не, най-подходящи размери на поликарбонатните образци за конкретните условия и т.н. Друг въпрос, свързан конкретно с бета-измерванията на РБГ, е как зависи ефективността на измерването от конкретните условия: тъй като при преминаване през веществото, бета-частиците търпят постоянни загуби на енергия и се разсейват, то ефективността при бета-измервания силно зависи от разпределението на активността в поликарбоната и от енергийния спектър на източника. Затова, целта, поставена в настоящата глава от дисертацията, е да се разработи поликарбонатния метод като постигането ѝ е свързано с решаването на следните задачи:

- Да се покаже приложимостта на метода за измерване на други РБГ (освен радон), разтворени във вода;
- Да се разработи и валидира теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати и да се демонстрират възможностите му;
- Да се разработи и валидира числен подход за определяне на ефективността при измерване на бета-радиоактивни благородни газове.

IV.1 Прилагане на поликарбонатния метод за измерване на ^{85}Kr във вода³

За да се провери приложимостта на метода за измервания на други РБГ, освен радон, разтворени във вода беше поставен следния експеримент: В еднакви херметични съдове (дрексели всеки с обем 0.7L) бяха приготвени водни проби с различна концентрация на ^{85}Kr . В съдовете бяха поставени и облъчени за едно и също време поликарбонатни образци – две пластинки всяка с размери 3.5cm × 4.5cm и дебелина съответно 0.25mm и 0.70mm; 75g гранули с форма на елиптичен цилиндър с височина 2.65mm и полуоси 1.78mm и 1.17mm.

Приготвянето на вода с определена концентрация на ^{85}Kr не е тривиална задача, тъй като криптонът е благороден газ и лесно дегазира от водата. При приготвянето на различни концентрации на ^{85}Kr във вода в дрекселите бяха използвани два метода:

- В дрекселите предварително бяха поставени поликарбонатни образци и бяха напълнени с вода несъдържаща ^{85}Kr . След това, през водата в различните дрексели се продухва въздух с различна обемна активност на ^{85}Kr , при което част от криптона във въздуха се разтваря във водата. При запазване на условията при дозирането

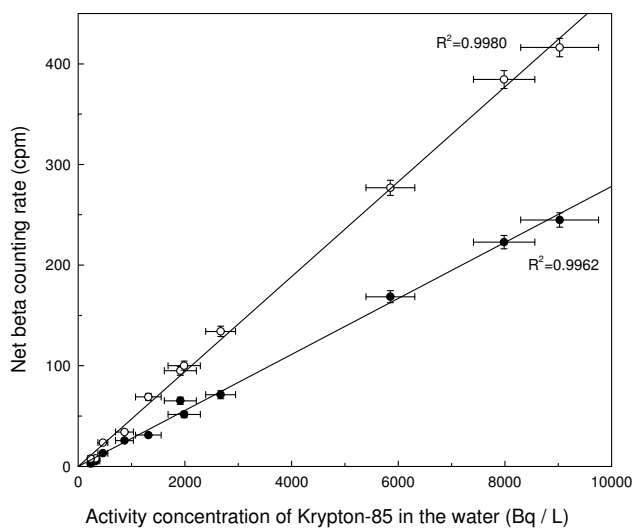
³Резултатите, представени в тази секция, са публикувани в библ. изт. [93]

на активността (време на продухване и дебит на въздуха), във всеки от дрекселите се очаква съотношението на обемната активност на ^{85}Kr във въздушната и водната фаза да се запази, т.е. за всички дрексели обемната активност на ^{85}Kr във водата да е пропорционална на тази във въздуха с приблизително един и същ коефициент на пропорционалност.

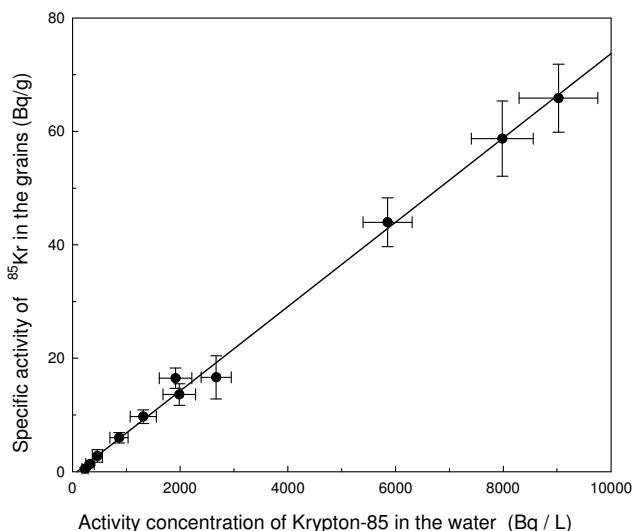
- В затворена система, през съд пълен с вода бавно се продухваше въздух с висока обемна активност на ^{85}Kr , след което обемната активност на ^{85}Kr във водата беше определена чрез гама-спектрометрия с детектор от свръхчист германий (HPGe, производител ORTEC, ефективност 24.9% и разделителна способност 1.9keV за гама-линията с енергия 1332keV на ^{60}Co) в геометрия "Marinelli" 450cm³. За гама-спектрометричния анализ беше използвана линията 514keV на ^{85}Kr . След това в няколко дрексела, в които предварително бяха поставени поликарбонатните образци, водата съдържаща ^{85}Kr беше разреждана в различни пропорции с вода несъдържаща ^{85}Kr . Степента на разреждане на водата беше определена масово като по този начин се знаеше приблизително какви ще са получените активности.

След дозиране на активностите, дрекселите бяха затворени, като беше обърнато специално внимание да не остават свободни въздушни обеми. Това беше необходимо, тъй като ^{85}Kr лесно дегазира от водата и оставянето на свободен обем въздух би довело до изпускане на ^{85}Kr от водата. Обемната активност, дозирана във всеки от дрекселите, беше измерена след края на облъчването гама-спектрометрично с гореописания HPGe детектор в геометрия "Marinelli" 450cm³, като за анализа беше използвана линията 514keV на ^{85}Kr . Пригответените активности бяха в три интервала: (0.8÷3)kBq/L (5 дрексела) получени чрез първия метод и (0.2÷0.5)kBq/L (3 дрексела) и (5÷10)kBq/L (3 дрексела) получени чрез втория метод. Всички облъчвания бяха с продължителност 330 часа.

След края на облъчването, поликарбонатните пластинки бяха измерени чрез общо-бета броене, а гранулитите – чрез гама-спектрометрия. За да може директно да бъдат сравнени резултатите от измерванията на идентичните детектори от различните дрексели, специално се внимаваше момента и продължителността на измерването на идентичните детектори да съвпадат. При бета-измерванията, поликарбонатните пластинки бяха измервани веднага след изваждането им от водата на установка за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500, като продължителността на всяко измерване беше 5 минути, като първо се измерваше 0.25mm пластинка и след това 0.70mm пластинка. На фиг. IV.1 е показано сравнение между чистата скорост на броене на бета-детектора за двете дебелини пластинки и обемната активност на ^{85}Kr във водата. Както се вижда, беше наблюдавана много добра линейна корелация и за двете дебелини пластинки. При гранулитите беше



Фигура IV.1: Зависимост на чистата скорост на броене от обемната активност на ^{85}Kr във водата при общо бета-броене на пластинки с дебелина 0.25mm (плътни кръгове) 0.7mm (незапълнени кръгове) облъчени за едно и също време във води при различни обемни концентрации на ^{85}Kr . Неопределеностите на чистата скорост на броене са на ниво 1σ .



Фигура IV.2: Зависимост на специфичната активност на ^{85}Kr в гранули от обемната активност на ^{85}Kr във водата, определена за гранули облъчени за едно и също време във води при различни обемни концентрации на ^{85}Kr . Неопределеностите на чистата скорост на броене са на ниво 1σ .

определена масовата активност на ^{85}Kr абсорбиран в тях чрез гама-спектрометрични измервания в геометрия "ТВ" (50mL цилиндър поставен върху детектора, в който са поставени гранули с определена маса). Измерванията започваха веднага след изваждане на гранулите от водата и бяха с продължителност 8.3h. При тях също беше наблюдавана добра линейна зависимост между масовата активност на абсорбирания в гранулите ^{85}Kr и обемната му активност във водата (фиг. IV.2). На базата на тези резултати бяха оценени минималните детектируеми концентрации [110] (MDAC – Minimum Detectable Activity Concentration) на ^{85}Kr във води за конкретните условия на облъчване и измерване за използваните детектори (табл. IV.1). За постигане на сравнима MDAC при директно измерване на водна проба съдържаща ^{85}Kr е необходимо да се измери 1L вода (геометрия Marinelli) за 8.3h (табл. IV.1). Такова измерване изисква херметично затваряне на съда, в който се измерва пробата, т.к. ^{85}Kr бързо дегазира от водата.

Въз основа на получените резултати може да заключим, че методът е приложим за измерване на ^{85}Kr във води. Такива измервания могат да намерят приложение, например в АЕЦ при контрол на херметичността на топлоотделящите елементи по време на работа, както и при съхранението им в басейните за отработено гориво.

Таблица IV.1: Оценка на минималната детектируема обемна активност (MDAC) на ^{85}Kr във води за използваните в експеримента детектори при конкретните условия на облъчване и продължителност на измерването t_m . За сравнение е дадена MDAC при директно измерване на 1L вода в херметичен съд, геометрия Marinelli.

Детектор	t_m (h)	MDAC (Bq/L)
Пластина 0.25mm	1	40
Пластина 0.70mm	1	25
Гранули 50g	8.3	65
Гранули 1L Marinelli	8.3	8
Вода 1L Marinelli	8.3	62

IV.2 Разработване, валидиране и приложение на теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати

При измерванията на ^{85}Kr във води чрез абсорбция в поликарбонати (представени по-горе в IV.1) беше използван подход, при който условията на облъчване и измерване се запазваха едни и същи (напр. времена на облъчване и измерване). Изискването беше наложено, за да могат да се правят количествени оценки и сравнения на базата на получените резултати, без да се налагат корекции за разлики във времената на облъчване и измерване, отчитащи процесите на сорбция и десорбция. Този подход е подходящ при лабораторни изследвания на метода, но не и при измервания в реални условия. Затова беше разработен теоретичен модел, описващ количествено процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати. Това позволява да се правят количествени измервания на концентрациите на РБГ в дадена среда, като се облъчи и измери поликарбонат при произволни, известни условия на облъчване.

IV.2.1 Теоретичен модел⁴

Предложеният теоретичен модел [73] описва процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати при следните две предположения:

- При поставяне на поликарбонат в среда съдържаща РБГ, поликарбонатът абсорбира радон, като концентрацията $c_{pc}(t)$ на РБГ на повърхността на поликарбоната е пропорционална на концентрацията му $c(t)$ в средата:

$$c_{pc}(t) = Kc(t) \quad (IV.1)$$

където K е коефициентът на разпределение на съответния РБГ между дадената среда и поликарбоната. Тук е прието и че РБГ е хомогенно разпределен в средата и изменението на концентрацията му зависи само от времето. Това приемане е коректно, когато характерните размери на поликарбонатните образци, използвани за измерване на РБГ, са много по-малки от дължината на дифузия на РБГ в съответната среда. Това условие беше изпълнено при представените по-нататък експерименти.

- Транспортът на РБГ в поликарбоната се описва като процес на дифузия с отчитане на радиоактивното разпадане на РБГ:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D\left(\frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial z^2}\right) - \lambda n \quad (IV.2)$$

където $n(x, y, z, t)$ е атомната концентрация на РБГ в поликарбоната, D е коефициентът на дифузия на благородния газ в поликарбоната и λ е константата на разпадане на конкретния му изотоп.

Решението на диференциалното уравнение IV.2 описва разпределението на РБГ в поликарбонатен образец като функция на времето. Началното и граничното условия, съответстващи на горните предположения са:

- $n(x, y, z, t = 0) = n_0(x, y, z)$ – начално условие, съответстващо на известно разпределение $n_0(x, y, z)$ на РБГ в момента $t = 0$;
- $n(x, y, z, t)|_S = c_{pc}(t) = Kc(t)$ – гранично условие, съответстващо на динамично равновесие между концентрациите на РБГ на границата поликарбонат–обкръжаваща среда при хомогенно разпределение на РБГ в средата.

Диференциалното уравнение IV.2 е разгледано в литературата и при тези гранични условия за тяло с произволна форма, решението има вида [111]:

⁴Теоретичният модел, представен в тази секция, е публикуван в библ. изт. [73]

$$\begin{aligned}
 n(x, y, z, t) &= \iiint_{V_{\xi\eta\zeta}} G(x, y, z, t, \xi, \eta, \zeta, \tau = 0) n_0(\xi, \eta, \zeta) d\xi d\eta d\zeta \\
 &\quad - D \oint_{S_{\xi\eta\zeta}} \int \frac{\partial G(x, y, z, t, \xi, \eta, \zeta, \tau)}{\partial \nu_{\xi\eta\zeta}} c_{pc}(\tau) dS_{\xi\eta\zeta} d\tau \\
 &= I_1 + I_2
 \end{aligned} \tag{IV.3}$$

където $G(x, y, z, t, \xi, \eta, \zeta, \tau)$ е функция на Green, $V_{\xi\eta\zeta}$ и $S_{\xi\eta\zeta}$ са обемът и околната повърхнина на поликарбоната, а $\partial G/\partial \nu_{\xi\eta\zeta}$ производната на функцията G по нормалата към повърхността $S_{\xi\eta\zeta}$. С I_1 и I_2 са означени двата интеграла от дясната страна на равенството. Тъй като функцията на Green зависи от формата тялото (поликарбоната) и само в някои случаи може да се представи аналитично, то по-нататъшните разглеждания са направени за два типа образци с определена геометрия – плоско-паралелна пластинка (пластинка) и цилиндър с основа кръг (гранула), за които функцията на Green може да се представи аналитично. Изборът на тези две геометрии беше определен от удобство при експериментална работа с образци с такава геометрия и наличие на готови такива образци на пазара⁵. При измерванията на РБГ чрез абсорбция в поликарбонати бяха следвани две основни стъпки, което позволява процесите на сорбция и десорбция да бъдат разгледани поотделно като два последователни процеса:

1. Сорбция: Необлъчен поликарбонат (такъв, който не е абсорбирал РБГ) се потапя за определено време t_s в среда съдържаща РБГ. Тъй като в началото в поликарбоната няма РБГ (т.е. началното условие е $n_0(x, y, z) = 0$), то в уравнението IV.3, при описание на процеса на сорбция, първия член става равен на нула ($I_1 = 0$) и остава само втория член (I_2). Тогава, от уравнение IV.3 се, вижда че, за да се определи концентрацията $n(x, y, z, t)$ на РБГ в поликарбоната, е необходимо, освен функцията G , да се познава и функцията $c_{pc}(t)$, описваща изменението на концентрацията на РБГ на повърхността на поликарбоната по време на облъчване. При представените по-нататък експерименти бяха използвани два режима на облъчване – при постоянна и при експоненциално намаляваща (с константата на разпадане на РБГ) концентрация на РБГ по време на облъчването, условно наречени ”режим А” и ”режим Б”. Пример за режим А е облъчване в среда с източник постоянно генериращ РБГ с някаква концентрация, а за режим Б е облъчване в херметичен съд, в който в началото на облъчването вкаран РБГ с определена концентрация. За тези два режима функцията $c_{pc}(t)$ има вида:

⁵При представените по-нататък експерименти бяха използвани пластинки изрязани от Makrofol фолио с различни дебелини, както и гранули, представляващи суровия материал за изработване на това фолио.

за режим А:

$$c_{pc}(t) = C_{pc} = const \quad (IV.4)$$

за режим Б:

$$c_{pc}(t) = C_{pc}e^{-\lambda t} \quad (IV.5)$$

Тук с C_{pc} е означена концентрацията на РБГ на повърхността на поликарбоната в началото на облъчването.

2. Десорбция: Поликарбонатът се изважда от средата съдържаща РБГ и след определено време t_d се измерва сигнала, дължащ се на радиоактивното разпадане на абсорбирания РБГ. Тъй като след сорбцията поликарбоната е изваден от РБГ съдържащата среда, то в този случай граничното условие става $n(x, y, z, t)|_S = 0$, а за начално условие се взема разпределението на РБГ в поликарбоната в края на процеса на сорбция $n_0(x, y, z) = n(x, y, z, t = t_s)$. При тези условия втория член в уравнение IV.3 се нулира ($I_2 = 0$) и остава само първия (I_1).

За случая на пластинка – паралелепипед, чиято дебелина L е много по-малка от другите два размера, може да се приеме че дифузия се осъществява само по направлението определено от L . При това задачата се свежда до едномерна като за този случай функцията на Green има вида [112, 111]:

$$\begin{aligned} G(x, t, \xi, \tau) &= \frac{2}{L} \sum_{j=1}^{\infty} e^{-\left[\left(\frac{j\pi}{L}\right)^2 D + \lambda\right](t-\tau)} \sin\left(\frac{j\pi}{L}x\right) \sin\left(\frac{j\pi}{L}\xi\right) \\ &= \frac{2}{L} \sum_{j=1}^{\infty} e^{-\lambda_j(t-\tau)} \sin\left(\frac{j\pi}{L}x\right) \sin\left(\frac{j\pi}{L}\xi\right) \end{aligned} \quad (IV.6)$$

като с λ_j е означен израза в експонентата:

$$\begin{aligned} \lambda_j &= \left(\frac{j\pi}{L}\right)^2 D + \lambda \\ &= \lambda \left(1 + \left(\frac{j\pi L_D}{L}\right)^2\right) \end{aligned} \quad (IV.7)$$

където $L_D = \sqrt{D/\lambda}$ е дължината на дифузия на РБГ в поликарбоната. Решаването на IV.3, като за функцията на Green се ползва израза IV.6, води до следните изрази за разпределението на РБГ в поликарбонатна пластинка:

Режим А:

- сорбция:

$$n(x, t_s) = \frac{4DC_{pc}}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}\right)}{\lambda_{2k+1}} (1 - e^{-\lambda_{2k+1}t_s}) \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right) \quad (\text{IV.8})$$

- десорбция:

$$n(x, t_d) = \frac{4DC_{pc}}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}\right)}{\lambda_{2k+1}} (1 - e^{-\lambda_{2k+1}t_s}) e^{-\lambda_{2k+1}t_d} \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right) \quad (\text{IV.9})$$

Режим Б:

- сорбция:

$$n(x, t_s) = \frac{4DC_{pc}}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}\right)}{\lambda_{2k+1} - \lambda} (e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1}t_s}) \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right) \quad (\text{IV.10})$$

- десорбция:

$$n(x, t_d) = \frac{4DC_{pc}}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}\right)}{\lambda_{2k+1} - \lambda} (e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1}t_s}) e^{-\lambda_{2k+1}t_d} \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right) \quad (\text{IV.11})$$

Активността, абсорбирана в пластинка може да се получи като се умножи концентрацията на РБГ по константата му на разпадане и се интегрира по обема на пластинката:

$$A(t) = \iiint_V \lambda n(x, t) dx dy dz = \lambda S \int_0^L n(x, t) dx \quad (\text{IV.12})$$

където S и V са съответно площта и обема на пластинката. Тъй като изразите за концентрацията на РБГ при сорбция се получават от тези за десорбция като се приеме $t_d = 0$, то по-нататък са представени изразите за активността само при десорбция:

Режим А:

$$\begin{aligned} A(t_s, t_d) &= \frac{8S\lambda^2 C_{pc} L_D^2}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(1 - e^{-\lambda_{2k+1}t_s})}{\lambda_{2k+1}} e^{-\lambda_{2k+1}t_d} \\ &= \frac{8\lambda K A_V V L_D^2}{L^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(1 - e^{-\lambda_{2k+1}t_s})}{\lambda_{2k+1}} e^{-\lambda_{2k+1}t_d} \end{aligned} \quad (\text{IV.13})$$

Режим Б:

$$A(t_s, t_d) = \frac{8\lambda K A_V V L_D^2}{L^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1}t_s})}{\lambda_{2k+1} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1}t_d} \quad (\text{IV.14})$$

където $A_V = \lambda C_{pc}/K$ е началната обемна активност на РБГ в околната сред, а $V = SL$ е обема на пластинката.

За случая на гранула – цилиндър с радиус R и височина H , функцията на Green в цилиндрични координати има вида:

$$G(r, z, t, \rho, \zeta, \tau) = \frac{2}{\pi R^2 H} \sum_{j=1}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{J_0\left(\frac{\nu_m}{R} r\right) J_0\left(\frac{\nu_m}{R} \rho\right)}{J_1^2(\nu_m)} \sin\left(\frac{j\pi}{H} x\right) \sin\left(\frac{j\pi}{H} \zeta\right) e^{-\lambda_{j,m}(t-\tau)} \quad (\text{IV.15})$$

където J_0 и J_1 са функции на Bessel от нулев и първи ред, ν_m е m -тия корен на J_0 , а $\lambda_{j,m}$ се дава с израза:

$$\lambda_{j,m} = \lambda \left(1 + \left(\frac{\nu_m L_D}{R} \right)^2 + \left(\frac{j\pi L_D}{H} \right)^2 \right) \quad (\text{IV.16})$$

При решаване на IV.3 съвместно с IV.15, за разпределението на РБГ в гранула се получава:

Режим А:

$$n(r, z, t_s, t_d) = 8DC_{pc} \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left(\frac{1}{H^2} \frac{(2k+1)\pi}{\nu_m} + \frac{1}{R^2} \frac{\nu_m}{(2k+1)\pi} \right) \frac{J_0\left(\frac{\nu_m}{R} r\right)}{J_1(\nu_m)} \times \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{H} z\right) \frac{(1 - e^{-\lambda_{2k+1,m} t_s})}{\lambda_{2k+1,m}} e^{-\lambda_{2k+1,m} t_d} \quad (\text{IV.17})$$

Режим Б:

$$n(r, z, t_s, t_d) = 8DC_{pc} \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left(\frac{1}{H^2} \frac{(2k+1)\pi}{\nu_m} + \frac{1}{R^2} \frac{\nu_m}{(2k+1)\pi} \right) \frac{J_0\left(\frac{\nu_m}{R} r\right)}{J_1(\nu_m)} \times \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{H} z\right) \frac{(e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1,m} t_s})}{\lambda_{2k+1,m} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1,m} t_d} \quad (\text{IV.18})$$

От последните два израза, чрез умножаване по константата на разпадане и интегриране по обема на гранулата (аналогично на случая за пластинка), се получава активността на РБГ абсорбиран в гранулата като функция на времето:

Режим А:

$$A(t_s, t_d) = 32\lambda K A_V V \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left(\left(\frac{L_D}{H\nu_m} \right)^2 + \left(\frac{L_D}{\pi R(2k+1)} \right)^2 \right) \frac{(1 - e^{-\lambda_{2k+1,m} t_s})}{\lambda_{2k+1,m}} e^{-\lambda_{2k+1,m} t_d} \quad (\text{IV.19})$$

Режим Б:

$$A(t_s, t_d) = 32\lambda K A_V V \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left(\left(\frac{L_D}{H\nu_m} \right)^2 + \left(\frac{L_D}{\pi R(2k+1)} \right)^2 \right) \frac{(e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1,m} t_s})}{\lambda_{2k+1,m} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1,m} t_d} \quad (\text{IV.20})$$

За удобство, при по-нататъшните разглеждания ще представим абсорбираната активност като:

$$A(t_s, t_d) = K A_V V f(t_s, t_d) \quad (\text{IV.21})$$

където с $f(t_s, t_d)$ е означена съответната времева зависимост в горните изрази за $A(t_s, t_d)$. Тъй като по-нататък функцията $f(t_s, t_d)$ ще бъде използвана, тук ще я дадем в явен вид за двата типа детектори и двата режима на облъчване:

Пластинка облъчена при режим А:

$$f(t_s, t_d) = 8\lambda \frac{L_D^2}{L^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(1 - e^{-\lambda_{2k+1} t_s})}{\lambda_{2k+1}} e^{-\lambda_{2k+1} t_d} \quad (\text{IV.22})$$

Пластинка облъчена при режим Б:

$$f(t_s, t_d) = 8\lambda \frac{L_D^2}{L^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1} t_s})}{\lambda_{2k+1} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1} t_d} \quad (\text{IV.23})$$

Гранула облъчена при режим А:

$$f(t_s, t_d) = 32\lambda \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left(\left(\frac{L_D}{H\nu_m} \right)^2 + \left(\frac{L_D}{\pi R(2k+1)} \right)^2 \right) \frac{(1 - e^{-\lambda_{2k+1,m} t_s})}{\lambda_{2k+1,m}} e^{-\lambda_{2k+1,m} t_d} \quad (\text{IV.24})$$

Гранула облъчена при режим Б:

$$f(t_s, t_d) = 32\lambda \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left(\left(\frac{L_D}{H\nu_m} \right)^2 + \left(\frac{L_D}{\pi R(2k+1)} \right)^2 \right) \frac{(e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1,m} t_s})}{\lambda_{2k+1,m} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1,m} t_d} \quad (\text{IV.25})$$

IV.2.2 Валидиране на теоретичния модел⁶

В изразите за абсорбираната активност $A(t_s, t_d)$ и за разпределението $n(x, t_s, t_d)$ или $n(r, z, t_s, t_d)$ на РБГ в пластинка или гранула (секция IV.2.1), участват суми от членовете на безкрайни редове. Тези редове са сходящи, така че двете величини могат да бъдат

⁶Резултатите от валидирането на теоретичния модел са публикувани в библиотечен изт. [73]

получени с определена точност (виж секция IV.2.4) като се ограничи съответната сума. За валидирането на модела, както и за по-нататъшни пресмятания е необходимо да се познават дължината на дифузия L_D на съответния РБГ в поликарбоната и коефициента на разпределение K на РБГ между съответната среда и поликарбоната. Методите, използвани тук за определяне на тези величини, както и стойностите им са представени в секция IV.2.3.

За валидирането на модела бяха проведени серии експерименти по облъчване на поликарбонати във въздушна или водна среда, съдържаща ^{85}Kr , ^{133}Xe или ^{222}Rn . След облъчването, сигналът от разпадането на абсорбираните в поликарбонатите РБГ беше измерван чрез общо бета-броене или чрез гама-спектрометрия и беше сравняван с резултати от пресмятания за абсорбираната активност, направени по теоретичния модел за съответните условия на облъчване. Както се вижда от IV.21, зависимостта на абсорбираната активност от времето се определя само от функцията $f(t_s, t_d)$, която освен от времената t_s и t_d , зависи само от L_D и характерните размери на поликарбоната, а величините пред $f(t_s, t_d)$ остават постоянни с времето. Това позволи моделът да бъде валидиран, като се сравни времевата зависимост на експериментално получения сигнал и теоретично пресметнатата функция $f(t_s, t_d)$.

При представените в настоящата работа експерименти по измерване на РБГ чрез абсорбция в поликарбонати, бяха използвани пластинки с дебелини $L=0.25; 0.30; 0.50$ и 0.70mm и гранули с форма на елиптичен цилиндър с височина $H=2.65\text{mm}$ и полуоси $a=1.78\text{mm}$ и $b=1.17\text{mm}$, като при теоретичните разглеждания елипсата беше приближена към кръг със същата обиколка, което съответства на радиус $R=1.49\text{mm}$. Измерванията с гранули бяха само гама-спектрометрични, при което известно количество гранули се поставят в подходяща геометрия. Тъй като при тези измервания гранулитите са много, броят им N беше оценен масово:

$$N = \frac{M}{\pi R^2 H \rho} \quad (\text{IV.26})$$

където M е масата на използваните гранули, ρ е плътността на поликарбоната, а $\pi R^2 H$ е обема на една гранула. Измерванията с пластинки бяха както гама-спектрометрични така и чрез общо бета-броене. При гама-спектрометрията бяха използвани кръгли пластинки с радиус 30mm , а при общото бета-броене – правоъгълни пластинки с размери $35\text{mm} \times 45\text{mm}$. При гама-спектрометричните измервания беше използван детектор от свръхчист германий (HPGe) на фирмата ORTEC с ефективност 24.9% и разделителна способност 1.9keV за гама-линията 1332keV на ^{60}Co . Геометрията и за пластинки и за гранули беше една и

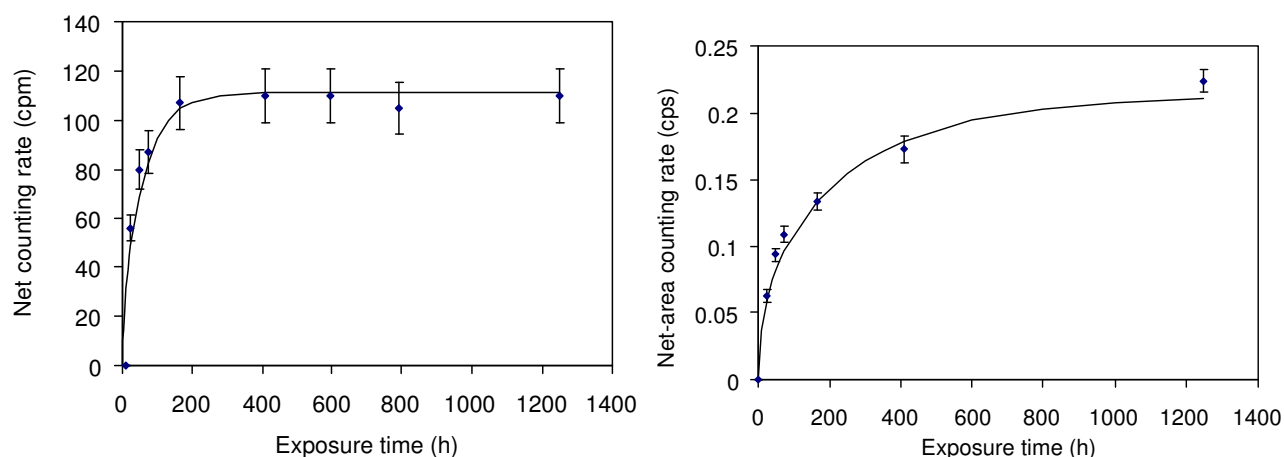
съща – 50mL цилиндър поставен директно върху детектора. При общото бета-броене беше използвана установка за измерване на ниски бета-активности с детектор – камбановиден ГМ-брояч с тънък входящ прозорец, защитен с пасивна и активна защита.

IV.2.2.1 Експерименти по сорбция

Експериментите по сорбция бяха проведени при облъчване на пластинки и гранули с ^{85}Kr във въздух. При тези експерименти поликарбонатните образци бяха поставени в херметични съдове (дрексели с обем 0.7L), в които беше дозиран ^{85}Kr с една и съща начална обемна активност. Дозирането беше осъществено като всички съдовете, заедно с помпа и йонизационна камера бяха свързани последователно в затворен кръг и в системата беше вкаран въздух съдържащ ^{85}Kr . След като с помощта на помпата въздухът в системата беше хомогенизиран, беше определена началната обемна активност на ^{85}Kr в системата (47.4 ± 0.2) MBq/m³, всеки от съдовете беше затворен херметично и системата беше разкачена. Продължителността на облъчванията за всеки от съдовете беше различна като времената на облъчване бяха между един ден и три месеца. Тъй като периодът на полуразпадане на ^{85}Kr е $T_{1/2} = 10.7$ у, то при тези сравнително кратки времена на облъчване може да се приеме, че облъчването е при постоянна обемна активност, т.е. режим А. След края на облъчването за всеки дрексел се следваше една и съща процедура: съдът се отваря, в определен момент, малко след отварянето, еднакво количество гранули (около 50g) се измерват гама-спектрометрично в зададена геометрия, а пластинките се измерват на установка за общо бета-броене, като се спазва началния момент след отварянето и продължителността на измерването за всеки тип детектори да съвпадат. По този начин се елиминира влиянието на десорбцията по време на измерване и може да се изследва зависимостта на абсорбираната активност от времето на сорбция. На фигура IV.3 експериментално получената скорост на броене в зависимост от времето на облъчване при общото бета-броене на 0.7mm пластинки е сравнена с теоретично пресметнатата активност. Такова сравнение е направено и за гранули (фигура IV.3), като при тях за сравнението бяха използвани резултати от гама-спектрометрични измервания, направени за чистата скорост на броене в пика на пълно поглъщане на гама-линията на ^{85}Kr с енергия 514keV. Както се вижда от двете фигури, моделът добре описва процеса на сорбция.

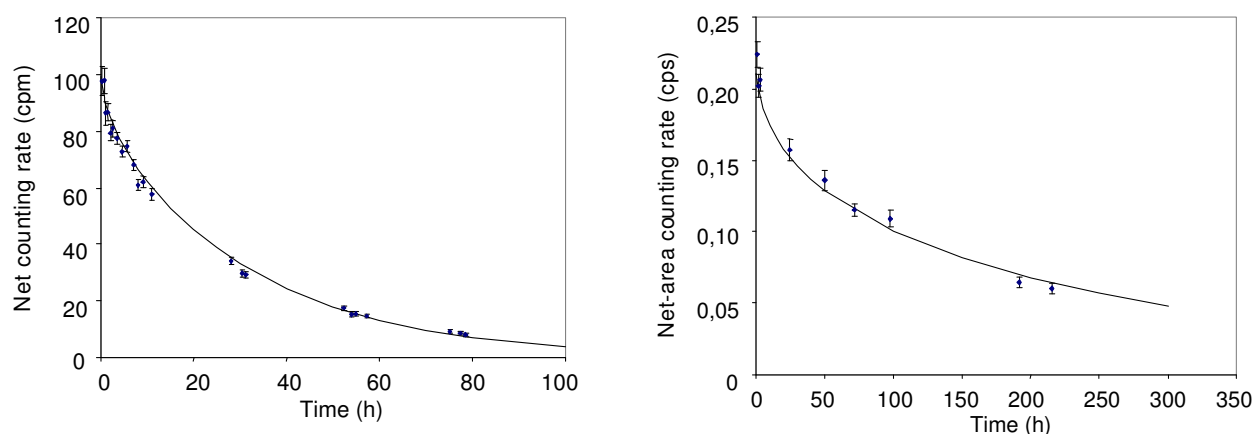
IV.2.2.2 Експерименти по десорбция

При експериментите по десорбция бяха облъчвани гранули и пластинки във вода и във въздух, като бяха използвани и трите РБГ (^{85}Kr , ^{133}Xe или ^{222}Rn). Облъчванията с ^{85}Kr бяха



Фигура IV.3: Зависимост на чистата скорост на броене от времето за сорбция при общо бета-броене на 0.7mm пластина (ляво) и при гама-спектрометрия на гранули (дясно), облъчвани с ^{85}Kr във въздух при режим А. С точки са дадени експерименталните резултати, а плътната линия представя теоретично пресметнатата зависимост.

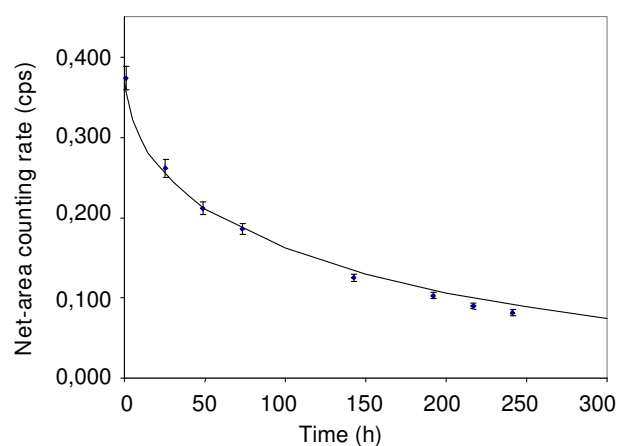
продължение на експеримента по сорбция. След първоначалните измервания, използвани за валидиране на модела при сорбция, измерването на образците беше продължено, като беше проследен на сигналът от общото бета-броене или гама-спектрометрията в зависимост от времето на десорбция и беше сравнен с теоретичните пресмятания за конкретните условия на облъчване. На фигура IV.4 са показани такива сравнения при общо бета-броене на пластика с дебелина 0.5mm и гама-спектрометрия на гранули. И при двата образца се наблюдава добра съгласуваност на експерименталните резултати с теоретичните пресмятания.



Фигура IV.4: Зависимост на чистата скорост на броене от времето за десорбция при общо бета-броене на 0.5mm пластина (ляво) и при гама-спектрометрия на гранули (дясно), облъчени с ^{85}Kr във въздух съответно за 596.4h и 1248h при режим А. С точки са дадени експерименталните резултати, а плътната линия представя теоретично пресметнатата зависимост.

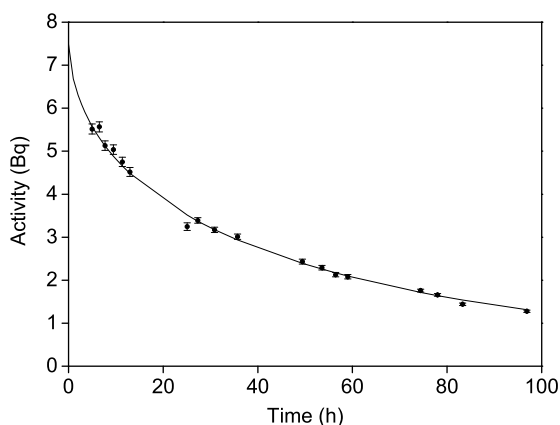
Експериментът по облъчване с ^{85}Kr във вода беше продължение на този, описан по-горе в тази глава (секция IV.1). Отново беше проследена зависимостта на сигнала от времето в режим на сорбция и беше сравнен с теоретичните пресмятания. Режимът на облъчване при този експеримент също може да се приеме за режим А, т.к. продължителността на облъчването (330h) беше много по-малка от периода на полуразпадане на ^{85}Kr . На фигура IV.5 е показано това сравнение при гама-спектрометрия на гранули. Отново беше наблюдавано много добро съгласуване на експериментални и теоретични резултати.

Фигура IV.5: Зависимост на чистата скорост на броене от времето за десорбция при гама-спектрометрия на гранули, облъчени 330h във вода с ^{85}Kr при режим А. С точки са дадени експерименталните резултати, а плътната линия представя теоретично пресметнатата зависимост.



При облъчванията с ^{222}Rn във въздух поликарбонатните образци бяха поставени в херметичен съд, в който беше създадена висока обемна активност на ^{222}Rn , след което съдът беше херметично затворен. Този начин на облъчване съответства на режим Б. При този режим, обемната активност на радона намалява експоненциално с времето, с периода на полуразпадане на радона. Поради това, съществува оптимално време на облъчване, при което се постига максимална активност на радона абсорбиран в поликарбоната (виж секция IV.2.4). Затова беше подбрано време на облъчване 66h, при което се достига абсорбирана активност близка до максималната. Аналогично на експериментите по десорбция с ^{85}Kr , беше проследяван сигналът от поликарбонатните образци в зависимост от времето на десорбция. Особеното при измерванията на ^{222}Rn е, че и при гама-спектрометричните, и при измерванията по обща бета-активност, се регистрира сигналът от краткоживеещите му продукти на разпадане ^{214}Bi и ^{214}Pb , получавани при разпадането на абсорбирания радон. По време на облъчването обаче, тези КПП се намират и в средата, в която се облъчва. Тъй като радонът е благороден газ той дифундира свободно в предоставения му обем без да се отлага по стените на съда. За разлика от него, КПП се отлагат по стените на съда и по повърхността на детектора, като скоростта на отлагане зависи от много фактори и това не позволява да се направи проста връзка между отложените КПП и радона в средата. Поради това, при измерванията на радон, е необходимо да се изчака известно време след

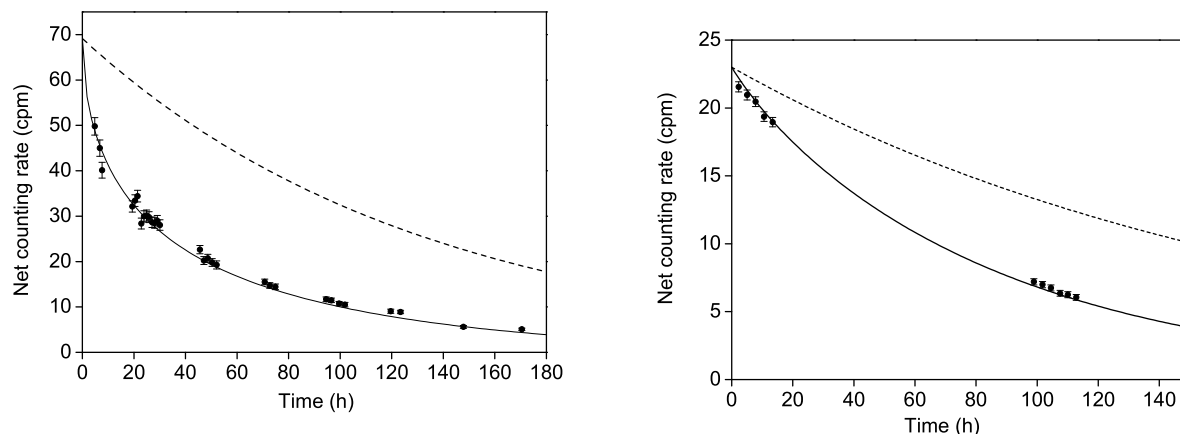
изваждане на детекторите от облъчващата среда, преди да започнат измерванията, за да се елиминира влиянието от сигнала от отложените по повърхността на поликарбоната КПП (наричани plate out). Характерният период на полуразпадане на този plate out зависи от периодите на полуразпадане на КПП по веригата на разпадане на радона до ^{214}Pb и се оценява на 40min. Правилото при такива измервания е да се изчака да изминат поне 4 периода на полуразпадане, ако "вредния" сигнал е от порядъка на "полезния" (какъвто е този случай). Затова измерванията започнаха 3h след изваждането на поликарбонатите. На фигура IV.6 резултатите от гама-спектрометрия на пластинки с дебелина 0.7mm са сравнени с теоретичните пресмятания. Както се вижда, има много добро съответствие между теоретичния модел и експерименталните резултати.



Фигура IV.6: Зависимост на абсорбираната активност от времето за десорбция за 0.7mm пластинки облъчени 66h във въздух с ^{222}Rn при режим Б. С точки са дадени експерименталните резултати, а плътната линия представя теоретично пресметнатата зависимост.

Облъчванията с ^{222}Rn и ^{133}Xe във вода бяха при режим Б – поликарбонатните образци бяха поставени в херметични съдове, съдържащи вода с висока концентрация на съответния РБГ. При измерванията на ^{222}Rn беше избрано време на облъчване близко до оптималното (48h), докато за ^{133}Xe , поради особености на експеримента, не можеше да се подбере такова време и облъчването беше 383h. След приключване на облъчването беше проследен сигналът от съответния РБГ, абсорбиран в поликарбонатите, като измерванията за ^{133}Xe започнаха веднага след облъчването, а за ^{222}Rn – 3h след края на облъчването, съгласно изискването, описано в предния абзац. Сравнението между модела и експерименталните резултати, както и в предните експерименти, показва добро съответствие и за двата РБГ (фигура IV.7). За сравнение на тези фигури, освен теоретичните криви за намаляването на активността в образците, са дадени и криви на намаляване дължащо се само на радиоактивно разпадане с период, съответстващ на дадения РБГ.

От доброто съгласуване на теоретичния модел с експерименталните резултати, наблюдавано при всички експерименти, можем да заключим, че предложеният теоретичен модел много добре описва процесите на сорбция и десорбция. Това позволява



Фигура IV.7: Зависимост на чистата скорост на броене от времето за десорбция при общо бета-броене на 0.3mm пластинки, облъчени във вода при режим Б съответно с ^{222}Rn за 48h и ^{133}Xe за 383h. С точки са дадени експерименталните резултати, с плътната линия – теоретично пресметнатата зависимост, а с прекъснатата линия – намаляване на сигнала дължащо се само на радиоактивно разпадане с период на съответния РБГ.

по-нататъшното му използване за предварително планиране и оптимизиране на експерименти по измерване на РБГ с поликарбонати, демонстрирано в секция IV.2.4. Освен това, както е показано в секция IV.2.3, моделът може да бъде използван при изследване на величини, свързани с дифузията и разтворимостта на РБГ в различни среди.

IV.2.3 Методи за определяне на коефициента на разпределение и дължина на дифузия на РБГ в поликарбонати, базирани на теоретичния модел⁷

Изследването на коефициента на разпределение и дължината на дифузия (респ. коефициента на дифузия $D = \lambda L_D^2$) на РБГ за поликарбонати представлява интерес не само от гледна точка прилагане на гореизложения теоретичен модел. Тези характеристики представляват интерес, например, при изследване на различни материали, използвани в строителството като "радонови бариери" [115, 116] или при измервания на радон, основаващи се на преминаването на радона през дифузионна мембрани [117, 116]. При тези изследвания често се налага използването на сложна експериментална установка [117, 116] и като резултат, обикновено, се определя величината пропускливост $p = KD$ (наричана също ефективен коефициент на дифузия), без да се получава информация за K и D поотделно

⁷Резултатите представени в тази секция са публикувани в библ. изт. [73, 113, 114]

[115, 117, 116].

Представеният по-горе теоретичен модел, позволи разработването на сравнително прости методи за определяне на дължината на дифузия и коефициента на разпределение на РБГ за поликарбонати. Общата схема при тези методи е: първо поликарбонатен образец се облъчва контролирано в РБГ съдържаща среда, след което се измерва сигналът, дължащ се на разпадането на абсорбирания РБГ. При подходящо калибриране на детекторната система може да бъде получена активността абсорбирана в поликарбоната и уравнение IV.21 да се реши спрямо търсената величина.

IV.2.3.1 Метод за определяне на дължината на дифузия

Методът за определяне на дължината на дифузия на РБГ в поликарбонати [73], беше разработен паралелно с валидирането на теоретичния модел. Той се основава на факта, че в израза IV.21 за активността, абсорбирана в поликарбоната константите λ_j и $\lambda_{j,m}$ нарастват с увеличаване на j и m , респективно членовете $e^{-\lambda_j t_d}$ и $e^{-\lambda_{j,m} t_d}$, намаляват. Тогава, след достатъчно дълго времето на десорбция, приносът на всички членове в сумата може да се пренебрегне спрямо първия и израза за активността като функция на времето за десорбция се свежда до една експонента:

$$A(t_d) = const e^{-\lambda_1 t_d} \quad (IV.27)$$

където λ_1 е съответната константа $\lambda_{j=1}$ или $\lambda_{j=1,m=1}$. Съответните изрази пред $e^{-\lambda_1 t_d}$, означени с $const$, не зависят от времето на десорбция и остават постоянни. Зависимостта на активността IV.27 от времето на десорбция се линеаризира в полулогаритмичен мащаб:

$$\ln(A(t_d)) = -\lambda_1 t_d + const' \quad (IV.28)$$

като с $const'$ е означен натурален логаритъм от константата $const$. Тогава, ако се проследи зависимостта на абсорбираната активност $A(t_d)$ от времето на десорбция t_d , константата λ_1 се определя като ъгловия наклон на правата $\ln A(t_d)$. След като се определи λ_1 , от изразите IV.7 и IV.16 може лесно да се определят L_D и D , като се има предвид връзката $L_D = \sqrt{D/\lambda}$. В зависимост от това какви образци са облъчени, съответно за пластинки и за гранули се получават следните изрази за L_D :

$$L_D = \frac{L}{\pi} \sqrt{\frac{\lambda_1}{\lambda} - 1} \quad (IV.29)$$

и

$$L_D = \sqrt{\frac{\lambda_1 - \lambda}{\lambda \left(\left(\frac{\pi}{H} \right)^2 + \left(\frac{\nu_1}{R} \right)^2 \right)}} \quad (\text{IV.30})$$

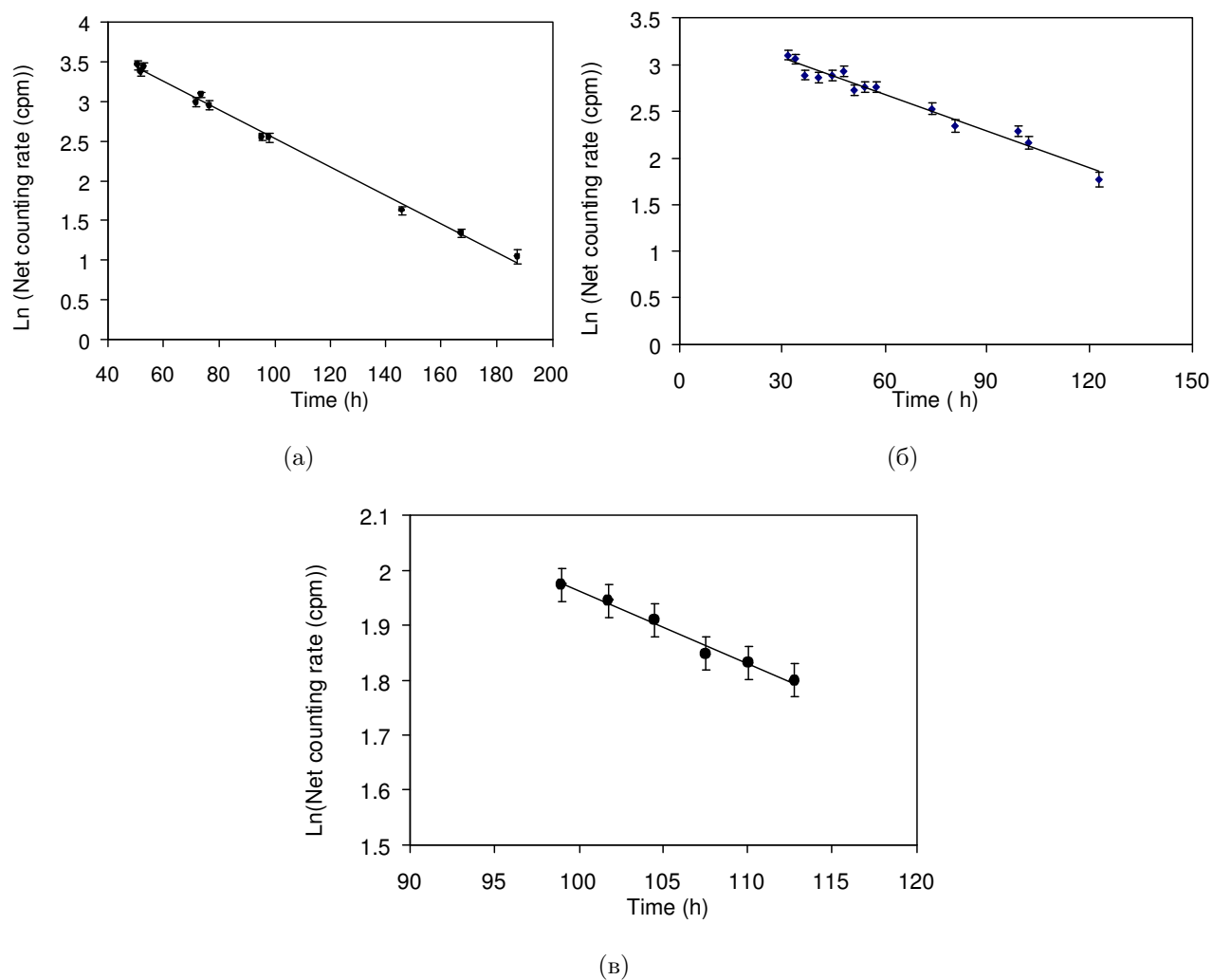
Важно е да се отбележи, че за да се приложи този метод и да се определят L_D и D , не е необходимо да се познават величините, включени в константата $const$. В този смисъл, дори не е необходимо да се определя абсорбираната активност в поликарбоната. Достатъчно е да се знае, че ефективността ε при измерванията при проследяване на зависимостта $A(t_d)$ не зависи от времето на десорбция, т.е. $A(t_d) = \varepsilon q(t_d)$, където $q(t_d)$ е скоростта на броене при измерване на поликарбоната, проследена във времето след достатъчно дълго време t_d^{crit} . Това се вижда, ако $A(t_d) = \varepsilon q(t_d)$ се замести в (IV.28):

$$\begin{aligned} \ln(q(t_d)) &= \ln\left(\frac{A(t_d)}{\varepsilon}\right) \\ \ln(q(t_d)) &= -\lambda_1 t_d + const' - \ln(\varepsilon) \end{aligned} \quad (\text{IV.31})$$

Колко дълго трябва да бъде времето⁸ t_d^{crit} , зависи от това колко бързо нарастват константите λ_j и $\lambda_{j,m}$, което зависи от квадрата на отношението между дължината на дифузия и характерните размери на съответния поликарбонатен образец (виж IV.7 и IV.16). Това налага изискване към размерите на образците при прилагане на този метод. Друго изискване е облъчването да е при сравнително висока обемна активност на РБГ. Това е необходимо, тъй като до изминаване на времето t_d^{crit} , РБГ десорбира и активността му в поликарбоната намалява. Това от своя страна води до намаляване на сигнала при измерване и съответно до по-голяма неопределеност при измерванията или дори невъзможност да се проведат измерванията поради статистическа неразличимост на полезния сигнал от фона. Трябва да се отбележи, че дължината на дифузия зависи от температурата, при която се определя (т.к. $L_D = \sqrt{D/\lambda}$, а $D = D(T)$), затова е необходим и температурен контрол независимо от метода за определянето ѝ.

Гореописаният метод беше приложен за определяне на дължината на дифузия в поликарбонат на трите РБГ, използвани при валидиране на теоретичния модел. При това, бяха използвани данни от експериментите по десорбция на РБГ от пластинки облъчени с ^{85}Kr и ^{222}Rn във въздух и с ^{133}Xe във вода, описани в секция IV.2.2. На фигура IV.8 в полулогаритмичен мащаб са представени експерименталните резултати, по които бяха определени дължините на дифузия за съответните РБГ, като с непрекъснатата линия е правата, прекарана през точките по метода на най-малките квадрати. Използваните резултати

⁸Критерий за определяне на t_d^{crit} е предложен в секция IV.2.3.3.



Фигура IV.8: Определяне на дължината на дифузия за (а) – ^{85}Kr , (б) – ^{222}Rn и (в) – ^{133}Xe . За всеки от трите РБГ е изследван сигналът при десорбция след време на десорбция по-голямо от t_d^{crit} . На графиките полученият сигнал е представен в полулогаритмичен мащаб и е фитиран с права. Наклонът на всяка от правите е използван за определяне на дължината на дифузия на съответния РБГ в Makrofol.

за всеки от РБГ са получени след изчакване на съответното за конкретните условия t_d^{crit} . За ^{133}Xe и ^{222}Rn , поради малката им дължина на дифузия, бяха използвани тънки пластинки с дебелини съответно 0.3mm и 0.25mm, а за ^{85}Kr – с дебелина 0.7mm. В таблица IV.2 са представени резултатите за дължините на дифузия на трите РБГ. Резултатите са получени при температура 25°C. Неопределеностите на дължините на дифузия са оценени по закона за разпространение на неопределеностите, приложен върху израза (IV.29), по който са пресметнати. В този израз участват константата на разпадане на съответния РБГ, дебелината на пластинката и константата λ_1 . Приносът на неопределеностите на първите две величини беше пренебрегнат, тъй като неопределеността на λ_1 се оказва доминираща. Неопределеността на λ_1 беше определена като неопределеността на ъгловия коефициент на съответната правата, описваща експерименталните данни (фигура IV.8).

Таблица IV.2: Дължини на дифузия на ^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn в поликарбонат, определени по описания в тази секция метод. Дадените неопределености са на ниво едно стандартно отклонение (1σ).

РБГ	L_D (mm)
^{85}Kr	10.5 ± 0.5
^{133}Xe	$(9.99 \pm 0.30) \times 10^{-2}$
^{222}Rn	$(6.92 \pm 0.36) \times 10^{-2}$

IV.2.3.2 Метод за определяне на коефициента на разпределение

За разлика от метода за определяне на L_D , методът за определяне на коефициента на разпределение на РБГ между дадена среда и поликарбонат [113] изисква пълно познаване на условията на облъчване, както и на дължината на дифузия на съответния РБГ в поликарбоната. Също така е необходимо да бъде известна и температурата при експеримента, тъй като коефициентът на разпределение е температурно зависим [74]. При този метод, поликарбонатният образец се облъчва за определено време t_s в дадената среда съдържаща РБГ с определена, известна концентрация. След това образецът се измерва в геометрия, за която е калибриран съответния детектор, така че да може да се определи активността на РБГ в образца. Тогава, ако е известна дължината на дифузия, уравнението IV.21 за активността в поликарбоната може да се реши спрямо коефициента на разпределение K :

$$K = \frac{\bar{A}(t_s, t_{d1}, t_{d2})(t_{d2} - t_{d1})}{V A_V \int_{t_{d1}}^{t_{d2}} f(t_s, t_d) dt_d} \quad (\text{IV.32})$$

където $\bar{A}(t_s, t_{d1}, t_{d2})$ е средната за времето на измерване $[t_{d1}, t_{d2}]$ активност на РБГ в образца. Интегралът $\int_{t_{d1}}^{t_{d2}} f(t_s, t_d) dt_d$ може да се пресметне и в явен вид се получава като в изразите IV.22-IV.25 за $f(t_s, t_d)$ експоненциалният член $e^{-\lambda_\mu t_d}$ се замени с $(e^{-\lambda_\mu t_{d1}} - e^{-\lambda_\mu t_{d2}})/\lambda_\mu$, където за пластинка $\lambda_\mu = \lambda_j$, а за гранули $\lambda_\mu = \lambda_{j,m}$.

Този метод беше приложен за определяне на коефициента на разпределение на ^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn за поликарбонат/въздух и на ^{85}Kr и ^{222}Rn за поликарбонат/вода. При всички облъчвания поликарбонатните образци бяха поставяни в херметични съдове, в които в съответната среда беше създадена определена начална обемна активност на РБГ и облъчванията протичаха при режим Б. При облъчванията с ^{85}Kr и в двете среди бяха облъчени образци при няколко различни обемни активности. При облъчванията във вода с ^{222}Rn беше използвана вода, взета от минерален извор в Момин проход с високо съдържание на ^{222}Rn , а облъчванията с ^{85}Kr във вода бяха съвместно с тези описани в секция IV.1. Условиата на облъчване при експериментите систематизирано са представени в таблица IV.3, като температурата при облъчванията беше около 25°C . Измерванията на детекторите облъчени с ^{85}Kr и ^{133}Xe започваха веднага след края на облъчването, докато за тези облъчени с ^{222}Rn беше изчакано разпадането на plate out-а (виж секция IV.2.2), като всички измервания на поликарбонатите бяха гама-спектрометрични в геометрия 50mL цилиндър, поставен върху детектора. Получените стойности за коефициента на разпределение са дадени в таблица IV.3. Относителната неопределеност на коефициента на разпределение $\delta(K)$ беше оценена по правилото за разпространение на неопределеностите, приложено върху израза (IV.32) по който са пресметнати:

$$\delta(K) = \sqrt{\delta^2(\bar{A}(t_s, t_{d1}, t_{d2})) + \delta^2(A_V) + \delta^2\left(\int_{t_{d1}}^{t_{d2}} f(t_s, t_d) dt_d\right)} \quad (\text{IV.33})$$

В израза за $\delta(K)$ е пренебрегнат приносът на неопределеностите на обема на поликарбонатите $\delta(V)$ и на началния и крайния момент на измерванията $\delta(t_{d2} - t_{d1})$. Неопределеностите на средната активност в поликарбоната $\delta(\bar{A})$ и на началната обемна активност в средата $\delta(A_V)$ бяха определени на базата на съответните измервания. Неопределеността на интегралния член $\delta(\int f(t_s, t_d) dt_d)$ беше оценена числено, като при това беше отчетена неопределеността на съответната на дължината на дифузия.

Таблица IV.3: Описание на експериментите и получени стойности при определяне на коефициента на разпределение K на ^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn за границата поликарбонат/въздух и поликарбонат/вода. Дадените неопределености са на ниво 1σ

РБГ	L_D (mm)	t_s (h)	Поликарбонат Среда	A_V (kBq/m ³) метод за измерване	K
^{85}Kr	10.5 ± 0.5	165	Гранули Въздух	5 точки в диапазона (650÷19600) Йонизационна камера	0.81 ± 0.05
^{133}Xe	0.0999 ± 0.0030	140	Гранули Въздух	34.5±7.0 Гама-спектрометрия	4.25 ± 1.21
^{222}Rn	0.0584 ± 0.0037	66	Пластинки Въздух $L=0.25\text{mm}$	1950±80 AlphaGUARD	25.4 ± 4.9
^{85}Kr	10.5 ± 0.5	330	Гранули Вода	11 точки в диапазона (230÷9000) Гама-спектрометрия	11.9 ± 0.8
^{222}Rn	0.0584 ± 0.0037	68	Гранули Вода	1550±230 Гама-спектрометрия	100 ± 15

IV.2.3.3 Метод за едновременно определяне на дължината на дифузия и коефициента на разпределение

Прилагането на описания секция IV.2.3.1 метод за определяне на дължината на дифузия на РБГ в различни поликарбонати доведе до откриването на един негов недостатък: в някои случаи, времето t_d^{crit} , което трябва да се изчака преди да се определи L_D , е много голямо. За това време активността в поликарбоната намалява дотолкова, че, практически, зависимостта ѝ от времето на десорбция не може да бъде проследена. Затова беше предложен друг метод [114], който елиминира този недостатък, като същевременно позволява едновременно (или поотделно) да бъдат определени и дължината на дифузия, и коефициентът на разпределение.

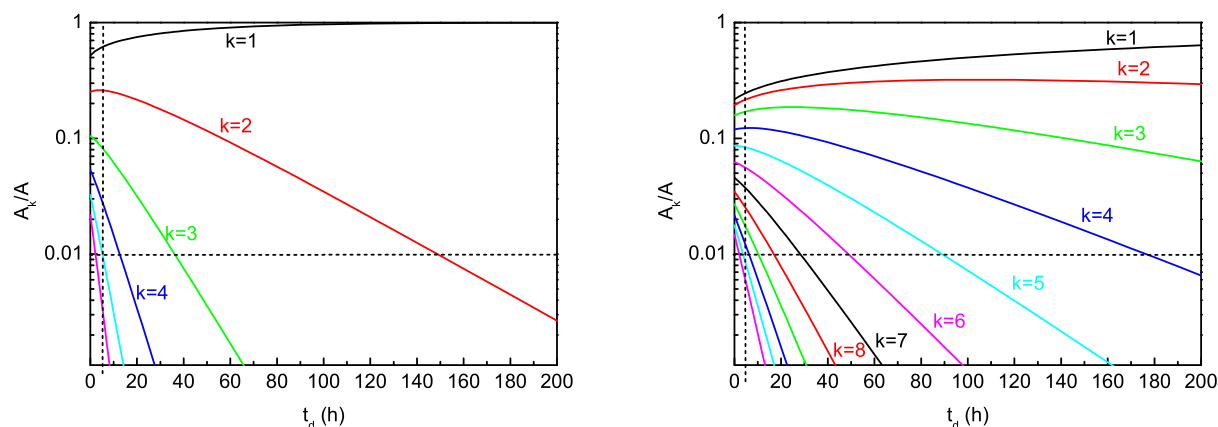
При този метод се проследява зависимостта на активността в поликарбоната от времето на десорбция. След това получената зависимост се фитира с нелинейна функция, представляваща теоретичната зависимост $A(t_s, t_d)$ (IV.21), параметризирана по L_D и K , а във $f(t_s, t_d)$ сумирането се ограничава до няколко члена и λ_j ($\lambda_{j,m}$) се замества със съответния израз (IV.7) или (IV.16). Например, за пластинка облъчена при режим Б след някои преобразувания, фитиращата функция има вида:

$$y(x; a, b) = a8A_V V \left(\begin{aligned} & \frac{e^{-t_s \lambda} - e^{-t_s \lambda \left(1 + (1\pi)^2 \left(\frac{b}{L}\right)^2\right)}}{(1\pi)^2} e^{-x \lambda \left(1 + (1\pi)^2 \left(\frac{b}{L}\right)^2\right)} \\ & + \frac{e^{-t_s \lambda} - e^{-t_s \lambda \left(1 + (3\pi)^2 \left(\frac{b}{L}\right)^2\right)}}{(3\pi)^2} e^{-x \lambda \left(1 + (3\pi)^2 \left(\frac{b}{L}\right)^2\right)} + \dots \\ & + \frac{e^{-t_s \lambda} - e^{-t_s \lambda \left(1 + (l\pi)^2 \left(\frac{b}{L}\right)^2\right)}}{(l\pi)^2} e^{-x \lambda \left(1 + (l\pi)^2 \left(\frac{b}{L}\right)^2\right)} \end{aligned} \right), \quad (\text{IV.34})$$

където $y(x; a, b) \equiv A(t_d; K, L_D)$, а $l = 2k - 1$ е нечетно число, до което се ограничава сумирането. Стойността на l силно зависи от отношението на дължината на дифузия към характерните размери на поликарбоната и момента t_d^{crit} от който нататък искаме да използваме зависимостта $A(t_d)$ за определяне на съответните величини. Критерият за определяне на l възприет тук е: от момента t_d^{crit} приносът в сумата на l -тия член да е по-малък от 1%. На фигура IV.9 е илюстрирано прилагането на този критерий за две пластинки с дебелини 0.25 и 0.70mm, облъчени 68h при режим Б в среда съдържаща ^{222}Rn . На тази фигура се вижда, че, ако искаме да ползваме резултатите след 5-ия час за случая на 0.25mm, сумирането трябва да се ограничи до 5-тия член или $l=9$, докато за 0.70mm трябва да се ограничи до 11-тия член ($l=21$). Този критерий може да бъде обърнат⁹ и като критерий за t_d^{crit} при зададено l . Тук се налага изводът, че при прилагане на този метод за определяне на L_D трябва да се ползват поликарбонати с размери сравними с дължината на дифузия. Това е така не само от удобство при въвеждане на фитиращата функция. По-важно, при по-дебелата пластинка, приносите на първите членове в сумата са сравними и редът бавно схожда с времето. Това води до по-бавна сходимост на алгоритъма за фитиране и дори, при недостатъчно добра статистика при измерванията на $A(t_d)$, може да доведе до грешно определяне на параметрите. Изискването към дебелината на пластинката не е задължително, когато е известна дължината на дифузия и трябва да се определи само коефициентът на разпределение, тъй като тогава времевата зависимост $f(t_s, t_d)$ се фиксира от L_D . Въпреки това, ограничението за l е необходимо да бъде спазено, тъй като от l зависи точността, с която се определя времевата зависимост $f(t_s, t_d)$ (виж фигура IV.9). Все пак, когато предварително е известно, че трябва да се определи само коефициентът на разпределение, по-добре е експериментът да се планира, така че да бъде използван по-простия метод, описан в секция IV.2.3.2.

За фитирането с функцията $y(x; a, b)$ беше използвана възможността "User Functions" на програмата TableCurve 2D v5.0 за задаване от потребителя на фитираща

⁹Това има отношение и към определянето на t_d^{crit} за нуждите на метода за определяне на L_D , описан в секция IV.2.3.1



Фигура IV.9: Зависимост на относителния принос A_k/A на k -тия член в сумата от времето на десорбция при пресмятане на абсорбираната активност за пластинки с дебелина 0.25mm (ляво) и 0.7mm (дясно), облъчени 68h при режим Б в среда съдържаща ^{222}Rn . С непрекъснати линии е представен приносът на k -тия член, а с прекъснати линии – условията $t_d^{crit}=5\text{h}$ и $A_k/A < 0.01$, описани в текста. При определяне на дължината на дифузия по експериментални данни, съответстващи на такова облъчване, прилагането на условията за A_k/A и t_d^{crit} за 0.25mm води до ограничаване на сумирането до $k=5$, а за 0.7mm – до $k=11$.

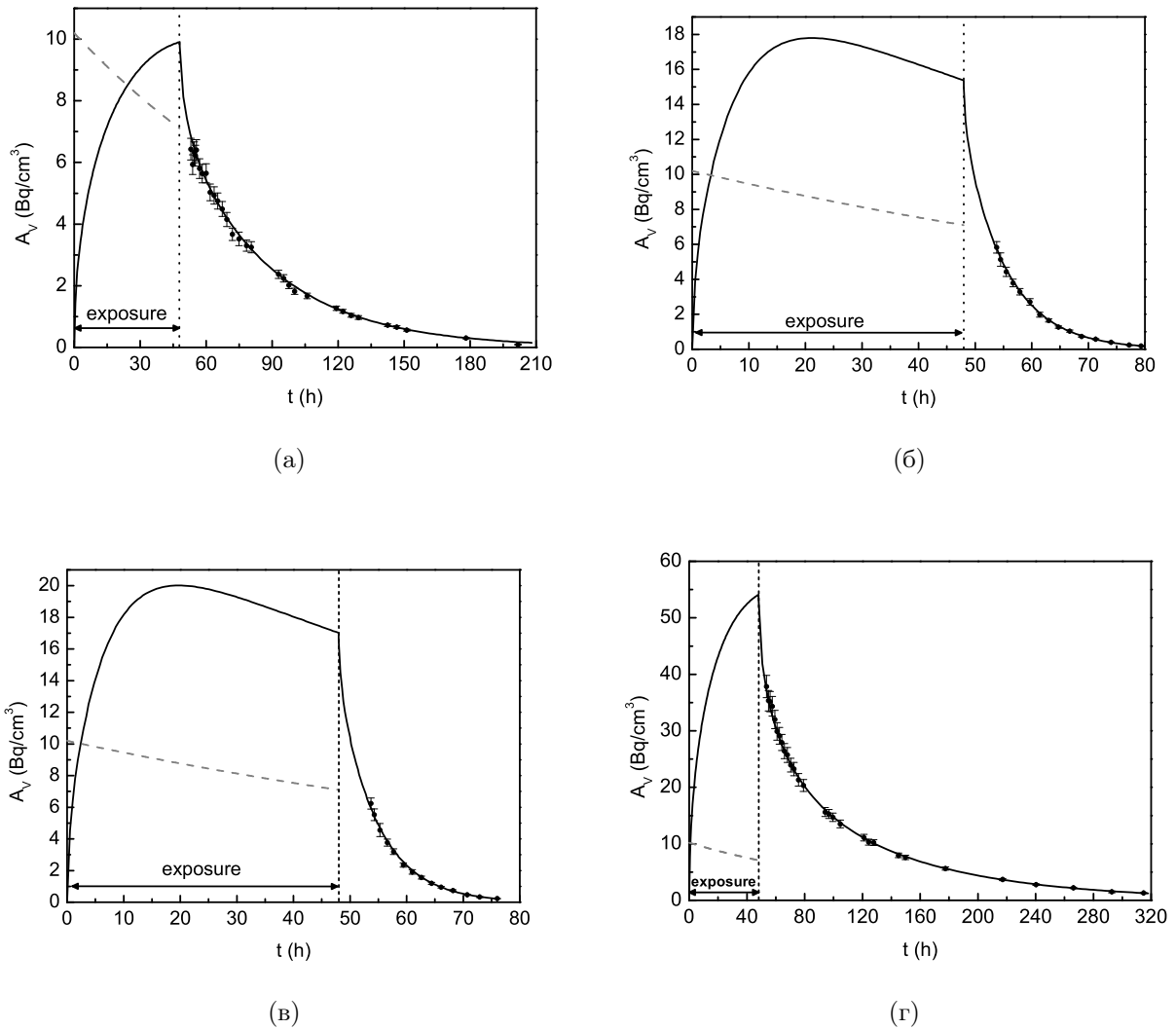
функция. Освен стойностите на параметрите L_D и K , програмата определя и неопределеностите им, като при фитирането използва Levenberg-Marquardt метод. Програмата позволява двете величини да бъдат определени поотделно, като във фитиращата функция съответния параметър се замества със стойността на известната величина. Когато трябва да се определи само дължината на дифузия, подобно на метода описан в секция IV.2.3.1, не е необходимо да се познават всички величини, включени в израза за $A(t_s, t_d)$. Достатъчно е да са известни размерите на облъчения поликарбонат и времето и режима на облъчване (т.е. величините, включени във $f(t_s, t_d)$).

Приложимостта на методът и на критерия за ограничаване на l бяха проведени в няколко експеримента. Първият експеримент беше числен, като при него, с компютърния код описан в секция IV.2.4, беше пресметната с висока точност теоретична крива на десорбция за 0.25mm пластинка, облъчена 68h с ^{222}Rn при режим Б с фиксирани коефициент на разпределение и дължина на дифузия. Бяха взети данните за активността при десорбция от 5-тия до 170-тия час (съответства на проследяване на десорбцията за 1 седмица) и бяха фитирани с функцията $y(x; a, b)$ при $l=9$, съгласно критерия, описан по-горе в тази секция. Стойностите, получени и за двете величини се отличаваха от истинските с по-малко от един процент. За сравнение, методът описан в секция IV.2.3.1, приложен върху същите данни дава стойност за L_D , която е с 48% по-голяма от истинската. За да се

постигане отклонение от истинската стойност по-малко от един процент, трябваше да бъдат взети стойности едва след 150-тия час, което съответства и на оценката за t_d^{crit} според гореописания критерий при $l=1$ (виж фигура IV.9). Трябва се отбележи, че активността в поликарбоната в 150-тия час е приблизително 10 пъти по-малка от тази в 5-тия час.

Следващите два експеримента бяха проведени във връзка с междулабораторно сравнение по определяне на ефективния коефициент на дифузия ($p = KD$) на радон в различни полимерни материали [118]. За целта бяха поставени два отделни експеримента – за определяне на коефициента на дифузия и за определяне на коефициента на разпределение. Двата експеримента бяха разделени, тъй като за по-точно определяне на дължината на дифузия (респ. коефициента на дифузия) беше необходимо облъчването да е при възможно по-висока концентрация на ^{222}Rn , за да има по-добра статистика при проследяване на зависимостта на абсорбираната активност от времето на десорбция. Обемната активност, която беше създадена, беше приблизително 10MBq/m^3 , а уредът, с който беше измервана обемната активност на ^{222}Rn , не позволява измерване на обемни активности по-големи от 2MBq/m^3 . Затова при този експеримент не беше възможно да се определи коефициентът на разпределение.

При експериментът за определяне на коефициента на дифузия бяха облъчени три неизвестни полимерни материала с форма на пластинки, предоставени от организаторите на сравнението, условно означени А, В и С. Освен тях, бяха облъчени и Makrofol пластинки. Информация за облъчените материали е дадена в таблица IV.4. Поликарбонатите бяха облъчени 48h при режим В в съд, в който в началото на облъчването беше създадена висока обемна активност на ^{222}Rn . След прекратяване на облъчването, веднага започнаха гама-спектрометрични измервания с HPGe-детектор на образците в геометрия 50mL цилиндър поставен върху детектора, като различните материали се редуваха и измерваха постоянно. При тези измервания беше определяна чистата площ на гама-линиите с енергия 295keV и 352keV на КПП ^{214}Pb . След края на измерванията, от резултатите бяха изключени първите 5h, за да се елиминира сигналът дължащ се на plate out (виж секция IV.2.2), като на фигура IV.10 са представени кривите на десорбция за трите материала и 0.25mm Makrofol пластинка. При определяне на дължините на дифузия за трите материала и за Makrofol (по 0.25mm пластинки), резултатите бяха фитирани с две криви – едната при $l=13$, а другата при $l=1$ ($l=1$ съответства на прилагане на метода, описан в секция IV.2.3.1). Резултатите са представени в таблица IV.4. Както се вижда в таблицата, дължините на дифузия за материали В и С бяха близки до дебелините им, поради което резултатите от двата метода съвпадат, докато за материал А и Makrofol дължината на дифузия е съответно два и пет пъти по-малка от дебелината на образците и както може



Фигура IV.10: Обемна активност на ^{222}Rn , абсорбиран в материалите (а) А, (б) В, (в) С и (г) Makrofol пластинки с дебелина 0.25mm. С точки са представени експерименталните резултати при проследяване на десорбцията, като неопределеностите са дадени на ниво 1σ . С черната линия е представена теоретичната зависимост на абсорбираната обемна активност, като за пресмятанията са използвани съответните стойности на L_D и K , определени в тази секция. С пунктирана линия е представено изменението на външната обемна активност на ^{222}Rn по време на облъчването, дължащо се на радиоактивно разпадане на ^{222}Rn (облъчване при режим Б).

Таблица IV.4: В таблицата са дадени дебелините на полимерните материали, за които е определена дължината на дифузия на ^{222}Rn , получените стойности за дължините на дифузия и коефициентите на дифузия на ^{222}Rn . За определяне на дължините на дифузия е използван методът, описан в тази секция при две стойности на l . При стойност на $l=1$ този метод съответства на метода описан в секция IV.2.3.1. За пресмятане на коефициента на дифузия са използвани стойностите, получени при $l=13$. За сравнение е дадена и дължината на дифузия на ^{222}Rn в Makrofol, определена от други автори в [60]. Дадените неопределености са на ниво едно стандартно отклонение (1σ).

Материал	Дебелина L (mm)	L_D (mm)	L_D (mm)	D (m^2/s)
		$l=13$	$l=1$	$l=13$
A	1.536 ± 0.016	0.721 ± 0.009	0.758 ± 0.011	$(1.09\pm 0.02)\times 10^{-12}$
B	1.126 ± 0.025	1.463 ± 0.033	1.463 ± 0.033	$(4.48\pm 0.10)\times 10^{-12}$
C	1.048 ± 0.068	1.437 ± 0.094	1.437 ± 0.094	$(4.32\pm 0.28)\times 10^{-12}$
Makrofol	0.250 ± 0.002	0.0508 ± 0.0010	0.0665 ± 0.0016	$(5.40\pm 0.12)\times 10^{-15}$
Makrofol според [60]		0.0517 ± 0.0008		

да се очаква, (на базата на числения експеримент описан по-горе) при $l=1$ фитът не се справя добре. За сравнение, в таблицата е дадена дължината на дифузия за Makrofol, определена от други автори с друг метод [60]. Вижда се, че стойността определена с метода описан в тази секция при $l=13$, съвпада с публикуваната в [60] в рамките на декларираните неопределености.

Експериментът за определяне на коефициента на разпределение беше проведен при същите условия, както този за дължината на дифузия. При него бяха облъчени в херметичен съд само материалите А, В и С при начална обемна активност на ^{222}Rn (1110 ± 57) kBq/m^3 , измерена с AlphaGUARD (AlphaGUARD PQ 2000 PRO, Genitron GmbH, Germany). В края на облъчването обемната активност на ^{222}Rn в съда беше измерена, за да се провери херметичността му. Измерената стойност беше (770 ± 27) kBq/m^3 , което добре съвпада с намаляване на активността, дължащо се само на радиоактивно разпадане на ^{222}Rn . Пет часа след края на облъчването започнаха гама-спектрометрични измервания на материалите, при същата геометрия както в експеримента за дължината на дифузия, като отново бяха определяни чистите площи на гама-линиите с енергия 295keV и 352keV на ^{214}Pb . Редът, в който бяха измерени материалите (С, В, А), беше определен според отношението L_D/L , тъй като от него се определя колко бързо ще десорбира ^{222}Rn от разреза (виж формула (IV.7)). Продължителността на измерванията беше такава, че да се постигне статистическа неопределеност на чистите площи на гама-линиите по-малка от

Таблица IV.5: Коефициент на разпределение на ^{222}Rn за границата материал/въздух. В таблицата е даден и коефициентът на дифузия, съответстващ на дължината на дифузия, използвана при определянето на коефициентите на разпределение (виж таблица IV.4). Пресметнат е и ефективният коефициент на дифузия $p = KD$. Неопределеностите на величините са на ниво 1σ .

Материал	D (m^2/s)	K	$p = KD$ (m^2/s)
A	$(1.09 \pm 0.02) \times 10^{-12}$	2.21 ± 0.13	$(2.40 \pm 0.15) \times 10^{-12}$
B	$(4.48 \pm 0.10) \times 10^{-12}$	2.17 ± 0.14	$(9.72 \pm 0.66) \times 10^{-12}$
C	$(4.32 \pm 0.28) \times 10^{-12}$	2.40 ± 0.22	$(1.04 \pm 0.12) \times 10^{-11}$
Makrofol	$(5.40 \pm 0.12) \times 10^{-15}$	27.6 ± 1.6	$(1.48 \pm 0.14) \times 10^{-13}$

5% (колкото е неопределеността на ефективността при тази геометрия на измерване). Абсорбираната в съответния поликарбонат активност беше определяна като средна стойност на двете стойности за активността, оценени на базата на чистата скорост на броене на всяка от двете гама-линии (коригирана за разпадане по време на измерванията). За определяне на коефициента на разпределение на ^{222}Rn за трите материала беше използван метода, описан в секция IV.2.3.2. Получените стойности за коефициента на разпределение на ^{222}Rn между дадените материали и въздух са дадени в таблица IV.5. В таблицата са дадени и стойностите за ефективния коефициент на дифузия, които бяха представени при международното сравнение. Въпреки голямата неопределеност на наличните литературни данни за използваните материали, стойностите представени от нас са добре съгласувани с тези данни. За успеха на участието в сравнението говори и добрата съгласуваност на нашите резултати с тези на повечето от останалите участващи лаборатории [118].

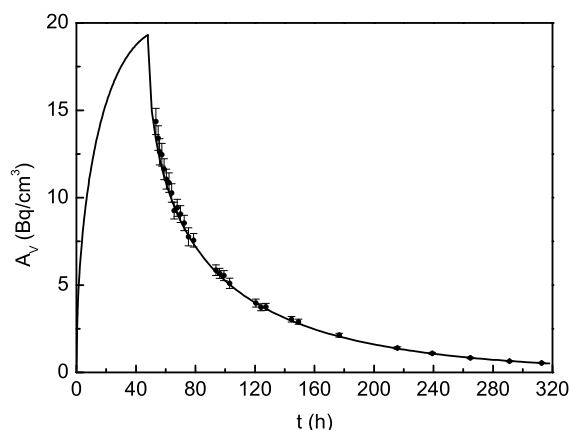
Резултатите, получени за материалите B и C от двата експеримента, бяха използвани за да се определи обемната активност на ^{222}Rn при първия експеримент (експеримента по определяне дължината на дифузия). Целта на това беше да се определи коефициентът на разпределение на ^{222}Rn за Makrofol/въздух. Идеята беше, резултатите от двата експеримента за чистите скорости на броене за двете гама-линии и за всеки от двата материала, да се приведат към един и същ момент (напр. $t_d=0$) и по отношението им да се определи обемната активност при първия експеримент. Бяха използвани резултатите само за двата материала, тъй като за тях може да се счита че за времето, за което е следен сигналът, десорбцията се описва само с една експонента. Това опростява корекцията и внася по-малка неопределеност при по-нататъшните пресмятания:

$$A_{V1} = A_{V2} \frac{1}{4} \sum_{i=1}^4 \frac{q_{1i}(t_d = 0)}{q_{2i}(t_d = 0)}, \quad (\text{IV.35})$$

където A_{V1} и A_{V2} са началните активности съответно за първия и втория експеримент, а q_{1i}/q_{2i} е отношението на съответните скорости на броене от двата експеримента, приведени към начален момент, като във формулата това отношение е осреднено по четирите гама-линии – по две за всеки материал. Това към кой момент време ще бъдат приведени q_{1i} и q_{2i} няма съществено значение, тъй като в интервалите време, в които са правени измерванията, десорбцията следва една и съща зависимост, доколкото двата експеримента са проведени при едни и същи условия. Определянето на $q_{1i}(0)$ беше направено на база на резултатите, използвани за определяне дължината на дифузия, като при фитирането с права в полулогаритмичен мащаб (прилагането на метода, описан в секция IV.2.3.1), всъщност свободния параметър на правата е $q_{1i}(0)$. Наклонът на всяка от правите (който всъщност е λ_1 , секция IV.2.3.1) беше използван, за да бъде приведена към начален момент скоростта на броене q_{2i} :

$$q_{2i}(0) = \overline{q_{2i}}(t_{d1}, t_{d2}) \frac{\lambda_1(t_{d2} - t_{d1})}{1 - e^{-\lambda_1(t_{d2} - t_{d1})}} e^{\lambda_1 t_{d1}} \quad (\text{IV.36})$$

където $\overline{q_{2i}}(t_{d1}, t_{d2})$ е средната скорост на броене за съответната гама-линия за интервала време на измерване (t_{d1}, t_{d2}) , дробният член отчита разпадане по време на измерването, а членът $e^{\lambda_1 t_{d1}}$ привежда скоростта на броене към $t_d=0$. След като бяха определени q_{1i} и q_{2i} , беше определена и $A_{V1}=(10.23\pm 0.57)\text{MBq/m}^3$. Неопределеностите на q_{2i} и A_{V1} бяха определени по правилото за разпространение на неопределеностите приложено върху съответните изрази (IV.36) и (IV.35). След като началната обемна активност A_{V1} на ^{222}Rn при първия експеримент беше определена, върху експерименталната зависимост за $A(t_d)$ за 0.25mm Makrofol пластинки от първия експеримент беше приложен методът за определяне на L_D и K , описан в тази секция при $l=13$. Получената стойност за K е дадена в таблица IV.5, а стойността, получена за L_D е дадена в таблица IV.4 (както беше посочено при описанието на първия експеримент). Тези стойности за L_D и K бяха използвани за пресмятане на теоретичната крива на десорбция за 0.70mm пластинки Makrofol, облъчени при първия експеримент, като за пресмятанията беше използван компютърния код описан в секция IV.2.4. Теоретичната крива беше сравнена с експерименталните резултати и беше наблюдавано много добро съответствие между теоретичния модел и експеримента (фигура IV.11). Това, от една страна, показва че методът за определяне на L_D и K работи много добре, а от друга – е още едно валидиране на теоретичния модел.



Фигура IV.11: Обемна активност на ^{222}Rn , абсорбиран в Makrofol пластинки с дебелина 0.7mm. С точки са представени експерименталните резултати при проследяване на десорбцията, като неопределеностите са дадени на ниво 1σ . С черната линия е представена теоретичната зависимост на абсорбираната обемна активност, като за пресмятанията са използвани стойностите на L_D и K , определени в тази секция за Makrofol пластинки с дебелина 0.25mm.

IV.2.4 Компютърен код, базиран на теоретичния модел. Изследване сходимостта на безкрайните суми и точността на пресмятанията при ограничаването им. Оптимизиране при планиране на експерименти.

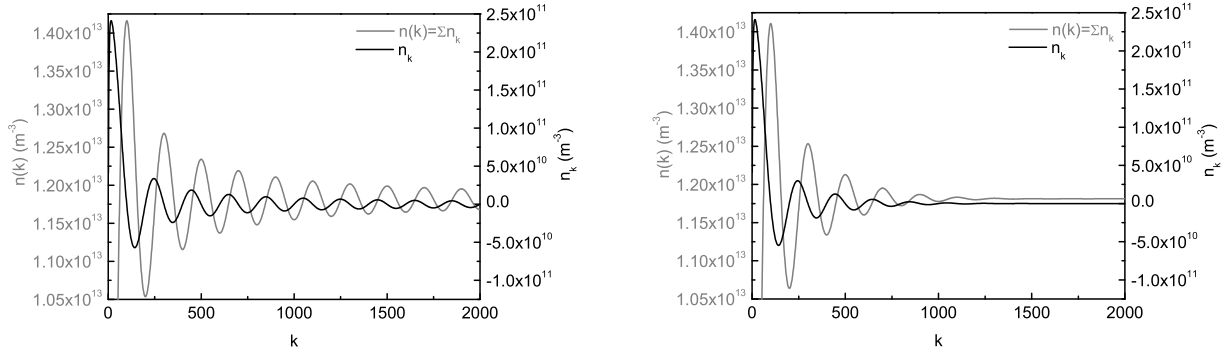
След като беше успешно експериментално валидиран, теоретичният модел, предложен в секция IV.2.1, може да бъде използван за числено моделиране при планиране и оптимизиране на експерименти по сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати при произволни условия на облъчване. Точността при численото моделиране, обаче, зависи от сходимостта на сумите на безкрайните редове, включени в изразите за разпределението и абсорбираната активност на РБГ в поликарбонатите (виж формули (IV.8)-(IV.11), (IV.13), (IV.14), (IV.17)-(IV.20)). Сходимостта на тези суми силно зависи от конкретния РБГ, условията на облъчване и геометрията на поликарбонатите. В някои случаи тези суми са бързо сходящи и ограничаване до първите няколко члена при сумирането дава достатъчно точно описание – например, за описание на времевата зависимост на абсорбираната активност в полимерните материали В и С след 5тия час на десорбция беше достатъчно да ограничим сумата до първия член (виж секция IV.2.3.3). В такива случаи пресмятанията могат да бъдат направени с конвенционални компютърни програми (напр. MS Excel) или дори калкулатор. В други случаи, примери за които ще бъдат дадени по-нататък в тази секция,

ограничаване на сумата дори до $\sim 10^6$ члена не е достатъчно. Това наложи разработването на компютърен код, който да прави пресмятания на базата на теоретичния модел, както и да дава възможност за контрол на точността при тези пресмятания.

IV.2.4.1 Компютърен код, базиран на теоретичния модел.

Представеният тук компютърен код беше разработен за пресмятания само за поликарбонати с форма на пластинки на езика за програмиране FORTRAN 77. В основната версия на кода, коефициентите на разпределение и дължините на дифузия бяха предварително зададени, т.к. експериментите, които трябваше да описва, бяха с три изотопа на РБГ (^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn) разтворени във въздух или във вода. Фиксирани бяха и двата режима (А и Б) на облъчване. Останалите величини, свързани с облъчването и размерите на пластинката, трябва да бъдат зададени чрез входен файл. В този файл също се задава до каква стойност на сумационния индекс k да се ограничат различните пресмятания. Максималната стойност на сумационния индекс е $k_{max}=2 \times 10^6$. Това ограничение се налага от компютърната памет, която може да управлява FORTRAN 77. С цел бързина при пресмятанията, т.к. някои от пресмятанията са много по-времеемки от други, бяха въведени два параметъра за ограничаване на k – един за по-бързите (k_{fast} , препоръчително $k_{fast}=k_{max}$) и един за по-бавните (k_{slow} , препоръчително $k_{slow} \sim 10^4$) пресмятания. Във входния файл също се указва какво точно да бъде пресметнато, също наложено с цел бързина при пресмятанията. Величините, които пресмята кодът са:

1. Величини, свързани с оценка на сходимостта и точността при пресмятане на дълбочинните профили. Тази възможност на кода е добавена само за дълбочинните профили, т.к. сходимостта е по-бавна при тяхното пресмятане. При избор на тази възможност, при фиксирани дълбочина и времена на сорбция и десорбция, кодът пресмята и записва във файл зависимостта на концентрацията на РБГ $n(k; x = X, t_s = T_s, t_d = T_d)$ от сумационния индекс k (фигура IV.12), стойността на k -тия член в сумата $n_k(k; X, T_s, T_d)$ (фигура IV.12) и стойността му разделена на сумата до k -тия член n_k/n . Тези пресмятания са бавни, тъй като за всяко k , $n(k)$ се пресмята наново с цел, да се гарантира, че изводите, направени на база на тези пресмятания, ще са валидни за величините пресметнати от кода. Поради това, тази възможност се избира отделно във входния файл и сумите се контролират от k_{slow} .
2. Изменението на абсорбираната активност на РБГ в пластинката като функция на времето $A(t_s, t_d)$ (виж формули (IV.13) и (IV.14)). Тъй като сумите в този случай са бързо сходящи и тези пресмятания отнемат сравнително малко изчислително време,



Фигура IV.12: Зависимост на концентрацията на ^{222}Rn $n(k; X, T_s, T_d)$ и на k -тия член в сумата $n_k(k; X, T_s, T_d)$ като функция на сумационния индекс k при сорбция (ляво) и десорбция (дясно) при режим А на облъчване за пластинка с дебелина $L=1.1\text{mm}$ и стойности на параметрите съответно $X=5.5 \times 10^{-3}\text{mm}$, $T_s=1000\text{h}$ и $T_d=10\text{s}$ (при десорбцията).

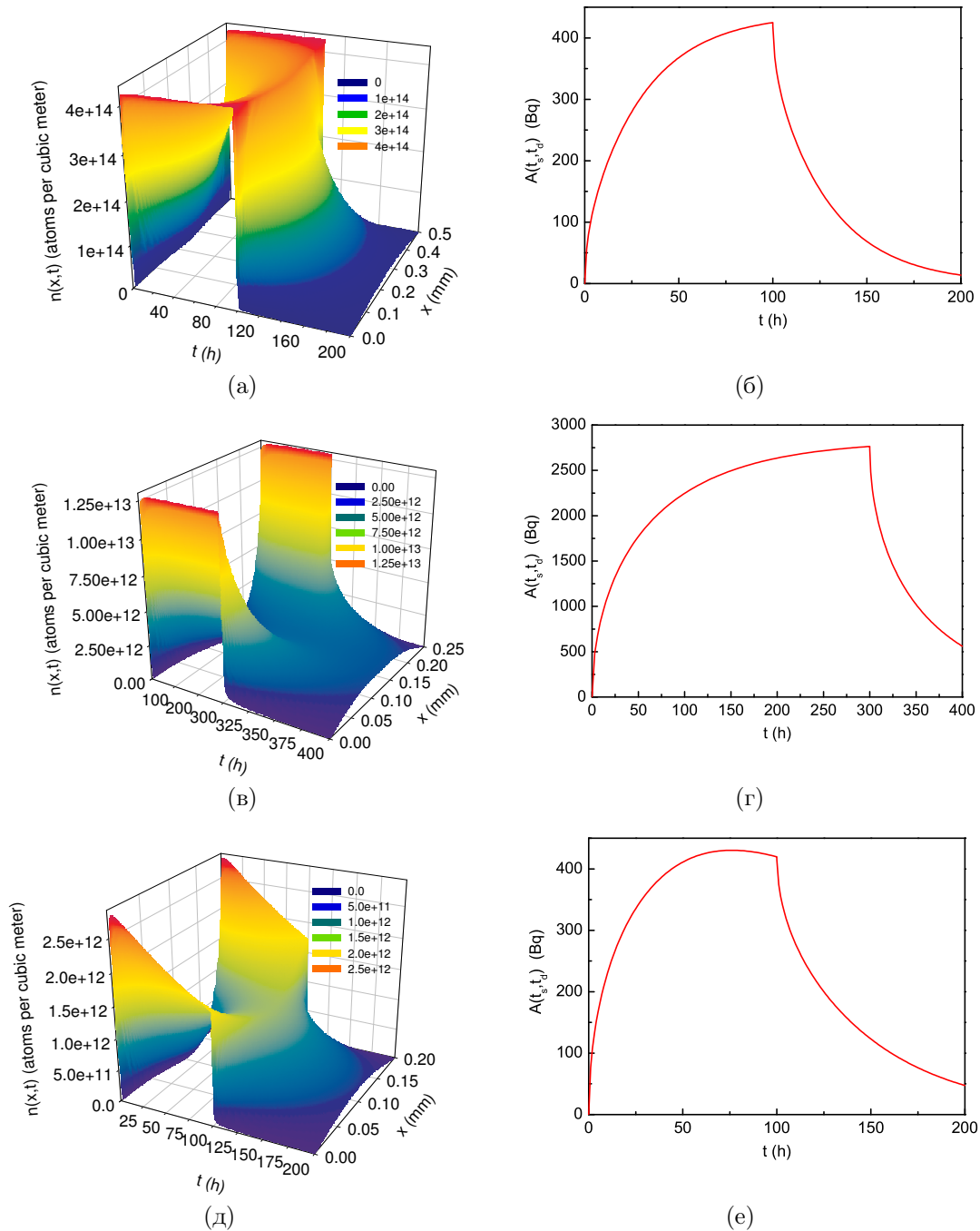
зависимостта $A(t_s, t_d)$ се пресмята винаги и се контролира от k_{fast} . На фигури IV.13 са представени зависимостите $A(t_s, t_d)$ и съответстващите им зависимости на дълбочинните профили, пресметнати с друга възможност на кода, описана по-долу.

- Изменението на абсорбираната активност на РБГ в пластинката между две дълбочини x_1 и x_2 като функция на времето $A(x_1, x_2, t_s, t_d)$. Тази зависимост може да се получи в аналитичен вид като се сменят границите на интеграла във формула (IV.12) и например за режим А има вида:

$$A(x_1, x_2, t_s, t_d) = 8\lambda K A_V V \frac{L_D^2}{L^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(1 - e^{-\lambda_{2k+1} t_s})}{\lambda_{2k+1}} e^{-\lambda_{2k+1} t_d} \left(\cos \frac{(2k+1)\pi x_1}{L} - \cos \frac{(2k+1)\pi x_2}{L} \right) \quad (\text{IV.37})$$

Тази величина е полезна, когато искаме да проверим каква част от пълната абсорбирана активност се намира в даден слой. Тази величина също се пресмята винаги и се контролира от k_{fast} .

- Изменението на профила на разпределение на активността на РБГ в обема на пластинката като функция на времето $n(x, t_s, t_d)$ (виж формули (IV.8)-(IV.11)). Зависимостта $n(x, t_s, t_d)$ се пресмята само, ако това бъде предварително указано във входния файл, тъй като, от една страна, сумата е бавно сходяща заради синусовите членове, а от друга страна, за всяка точка от времевата зависимост се пресмята дълбочинна зависимост върху мрежа със стъпка $L/100$. Поради времеемкостта на



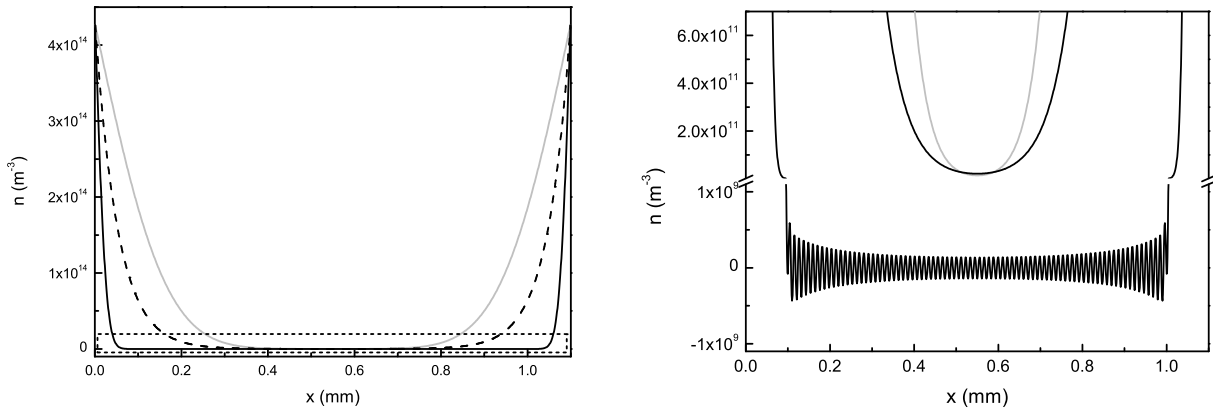
Фигура IV.13: Разпределение на концентрацията $n(x, t_s, t_d)$ на РБГ в поликарбонатна пластинка (ляво) и съответстващата ѝ абсорбирана активност $A(t_s, t_d)$ (дясно) като функции на времето. (а), (б) – Пластинка с дебелина $L=0.5\text{mm}$, облъчвана с ^{85}Kr във въздух при режим А, $T_s=100\text{h}$, $T_d=100\text{h}$. Поради сравнително голямата си дължина на дифузия, за 100 часа ^{85}Kr успява да достигне почти хомогенно разпределение в пластинката. (в), (г) – Пластинка с дебелина $L=0.25\text{mm}$, облъчвана с ^{222}Rn във въздух при режим А, $T_s=300\text{h}$, $T_d=100\text{h}$. За 300 часа ^{222}Rn достига равновесното си разпределение, но поради малката му дължина на дифузия, концентрацията му на повърхността остава много по-голяма отколкото в дълбочина. (д), (е) – Пластинка с дебелина $L=0.2\text{mm}$, облъчвана с ^{133}Xe във въздух при режим Б, $T_s=100\text{h}$, $T_d=100\text{h}$. Абсорбираният в повърхностния слой на пластинката ^{133}Xe следва намаляването на ^{133}Xe в околната среда. Същевременно концентрацията му в дълбочина се увеличава до достигане на равновесна концентрация.

тези пресмятания, те се контролират от k_{slow} и независимо от точността, не се препоръчва многократно надвишаване на препоръчителното ограничение за $k_{slow} \sim 10^4$. На фигура IV.13 е показано развитието във времето на дълбочинното разпределение $n(x, t_s, t_d)$ на трите РБГ при облъчване при различни условия на пластинки с различни дебелини. Показани са и съответстващите зависимости на абсорбираната в пластинките активност $A(t_s, t_d)$. При пресмятането на дълбочинните профили се пресмята и активността в пластинката, като зависимостта $n(x, t_s, t_d)$ се интегрира числено по метода на трапците:

$$A_{sum}(t_s, t_d) = S\lambda \sum \frac{n(x_i, t_s, t_d) + n(x_{i-1}, t_s, t_d)}{2} \Delta x, \quad (IV.38)$$

където x_i е i -тия слой, Δx е дебелината на слоя, определена от гъстотата на мрежата, върху която се пресмята $n(x, t_s, t_d)$ (в конкретния случай $\Delta x = L/100\mu\text{m}$), а S е площта на пластинката. Получената по този начин зависимост $A_{sum}(t_s, t_d)$ може да се сравни с пресметнатата по-горе $A(t_s, t_d)$ и по този начин да се контролира точността на пресмятанията за $n(x, t_s, t_d)$.

5. Детайлен профил на разпределението на активността на РБГ в обема на пластинката в избран момент от време. За разлика от пресмятанията в предната точка, при тези пресмятания се цели да се получи с висока точност разпределението $n(x, t_s, t_d)$ за конкретни стойности на $t_s = T_s$ и $t_d = T_d$. За получаване на по-детайлен профил на разпределението $n(x)$, гъстота на мрежата по x при пресмятането му се задава във входния файл. С цел по-голяма точност на профила $n(x, T_s, T_d)$, пресмятането му се контролира от k_{fast} . Независимо от това, дори при $k_{fast}=k_{max}$ в някои случаи, детайлен профил не може да бъде получен (виж фигура IV.14) поради бавната сходимост на сумата. Пресмятането на детайлния профил също се прави при указване във входния файл. За контрол на пресмятанията, тук също се пресмята $A_{sum}(T_s, T_d)$ (формула (IV.38)) и се сравнява със съответната активност $A(T_s, T_d)$ пресметнатата с висока точност. На фигура IV.14 са показани няколко профила на разпределение на ^{222}Rn и ^{85}Kr в пластинка с дебелина $L=1.1\text{mm}$ за няколко времена на сорбция при режим А.



Фигура IV.14: Профили на разпределение на концентрацията $n(x, T_s, T_d)$ на ^{85}Kr и ^{222}Rn в пластинка с дебелина $L=1.1\text{mm}$ при сорбция в режим А на облъчване, пресметнати при $k=2 \times 10^6$. Очертания с пунктир участък от лявата графика е показан увеличен на дясната. При облъчване 10 часа, концентрацията на ^{222}Rn (черна, непрекъснатата линия) за дълбочини $x > 0.08\text{mm}$ не може да бъде пресметната дори при $k = k_{max}$, т.к. ^{222}Rn се разпространява бавно в дълбочина на пластинката поради малката си дължина на дифузия. За същото време на облъчване (10 часа) концентрацията на ^{85}Kr (сива линия) в средата на пластинката е равна на равновесната концентрация на ^{222}Rn (черна, прекъснатата линия), която се достига след $t_s \sim 300\text{h}$. Тъй като дължината на дифузия на ^{85}Kr е много по-голяма от дебелината на пластинката, равновесното разпределение за ^{85}Kr е хомогенно, поради което не е дадено на фигурата (достига се след $t_s \sim 600\text{h}$).

IV.2.4.2 Изследване сходимостта на безкрайните суми и точността на пресмятанията при ограничаването им.¹⁰

Сходимостта на сумите в изразите за $n(x, t_s, t_d)$ и $A(t_s, t_d)$ се определя от експоненциалните членове, които зависят от времето на сорбция, времето на десорбция и константите λ_j , които константи от своя страна зависят от отношението L_D/L . Това определя по-бавна сходимост на сумите при малки времена на сорбция и малка стойност на отношението L_D/L . Заради малката стойност L_D/L , РБГ относително бавно се разпространява в дълбочина на пластинката и за малки времена на облъчване не може да проникне в дълбочина. Това води до порядъци разлика между концентрацията на РБГ на повърхността и в дълбочина. Това, от гледна точка на математическото решение за $n(x, t_s, t_d)$, се изразява като сума от членовете на бавно сходящ ред, умножени по синусов член с период L/x . Близо до повърхността синусовия член бавно сменя знака си и заради големите членове в началото, сумата нараства бързо, след което започва да осцилира около истинската стойност с амплитуда

¹⁰Част от резултатите, представени в тази секция, са публикувани в библ. изт. [119]

много по-малка от тази стойност (фигура IV.15). От друга страна, в дълбочина синусовия член бързо сменя знака си, поради което още в началото сумата започва да осцилира с бавно намаляваща амплитуда около стойност сравнима или дори много по-малка от тази амплитуда (фигура IV.15). Тъй като активността в пластинката представлява интеграл от дълбочинното разпределение по дебелината на пластинката, то зависимостта на активността от k ще схожда по-бързо: $A(k; x_1, x_2) \sim (n(k; x_1) - n(k; x_2))/k$. Качествено обаче, зависимостта $A(k)$ ще следва същата зависимост като $n(k)$, т.к. сходимостта се определя от експоненциалните членове, които са едни и същи в изразите и за двете величини. В частния случай, когато $x_1 = 0$ и $x_2 = L$, косинусовия член отпада (виж формула IV.37), но приносът на k -тия член в сумата продължава да намалява бавно с нарастване на k , т.е. сумата продължава да схожда бавно.

Сходимостта на безкрайните суми беше изследвана с помощта на компютърния код описан по-горе. За целта, кодът беше модифициран, така че да прави пресмятания за $n(k; x = X, t_s = T_s, t_d = T_d)$ при фиксирани параметри X , T_s и T_d за стойности на k много по-големи от k_{max} , като същевременно пресмятанията бяха многократно ускорени. Беше изследвана зависимостта $n(k)$ в режим на сорбция и десорбция при различни стойности на X , T_s и T_d . На фигура IV.15 е представена зависимостта $n(k)$ за няколко случая на сорбция и десорбция, а на фигура IV.16 е дадена зависимостта от k на амплитудата $n_A(k)$, с която $n(k)$ осцилира около "истинската" си стойност. При проведените изследвания бяха забелязани някои зависимости:

1. В режим на сорбция, за фиксирана дълбочина X , амплитудата $n_A(k)$ в двойно логаритмичен мащаб зависи линейно от сумационния индекс k (фигура IV.16(a), IV.16(б)), като наклона на правата не зависи от вида на РБГ, режима (А или Б) на облъчване или дълбочината x .
2. При облъчване в режим А, амплитудата n_A за фиксирана дълбочина X остава постоянна с времето на сорбция (каквото е поведението и на концентрацията на РБГ в околната среда), а при режим Б – намалява експоненциално, като следва намаляването на концентрацията на РБГ в околната среда (фигура IV.16(б)).
3. При фиксирани k , t_s и t_d и при сорбция, и при десорбция зависимостта $n_A(x/L)$ в интервала $0 < x/L < 0.5$ и $n_A((x-L)/L)$ в интервала $0.5 < x/L < 1$ в двойно логаритмичен мащаб е близка до линейна (фигура IV.16(г)), като наклона на правата не зависи от k , t_s , t_d , режима (А или Б) на облъчване и вида РБГ. Зависимостта на $n_A(x)$ в целия интервал $0 < x < L$ може да се представи като сума от двете зависимости (фигура IV.16(г)).

4. При режим на десорбция, зависимостта на амплитудата от сумационния индекс k в полулогаритмичен мащаб се описва добре с полином от втора степен при k по-голямо от дадена стойност. Сходимостта на сумата при пресмятане на $n(x, t_s, t_d)$ при десорбция зависи от времето на десорбция, като за по-големи времена на десорбция сумата е по-бързо сходяща (фигура IV.16(в)). Въпреки много по-бързата сходимость при десорбция (в сравнение с тази при сорбция), $n(x, t_s, t_d)$ не винаги може да се пресметне (фигура IV.15(б)). Това ограничение се задава от машинната точност, с която се правят пресмятанията.

Наблюдаваните зависимости могат да послужат за определяне границите на приложимост на кода, както и за по-нататъшното му усъвършенстване:

- Амплитудата n_A може да бъде използвана като оценка на грешката на пресметнатата стойност $n(k; X, T_s, T_d)$ при дадената стойност на k . От зависимостите 1, 2 и 3 може да се изведе аналитичен израз за n_A :

$$\frac{n_A(x, k, t_s)}{n(x=0, t_s)} = \frac{B}{k^\alpha \left(\frac{x(L-x)}{L^2}\right)^\beta} \quad (\text{IV.39})$$

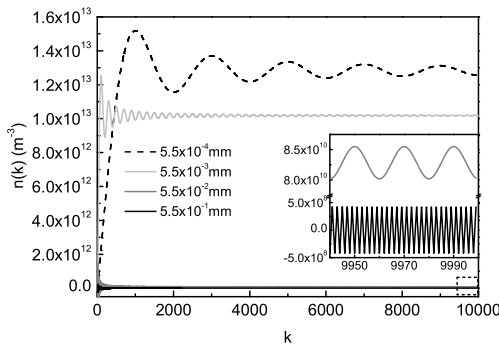
където $B=0.103\pm 1\%$ $\alpha=0.99995\pm 0.01\%$ $\beta=0.997\pm 0.5\%$ са безразмерни константи, определени емпирично и независещи от вида РБГ.

- Въз основа на така оценената грешка може да се оцени максималната дълбочина, при по-голяма от която $n(x)$ не може да се пресметне за конкретните условия.
- При десорбция максималната дълбочина може да оцени на база на машинната точност. Например при по-голяма от тази дълбочина концентрацията на РБГ отнесена към максималната пресметната концентрация става по малка от машинната точност, умножена по подходящо избрана константа.
- Идея за подобряване на точността при пресмятанията на $n(x)$ е да се използва периодичността на $n(k)$. Ако за всяка дълбочина се подбира стойност на k кратна на периода на $n(k)$ (но все пак близка до зададената във входния файл), тогава грешката ще е много по-малка, отколкото стойността при фиксирано k .

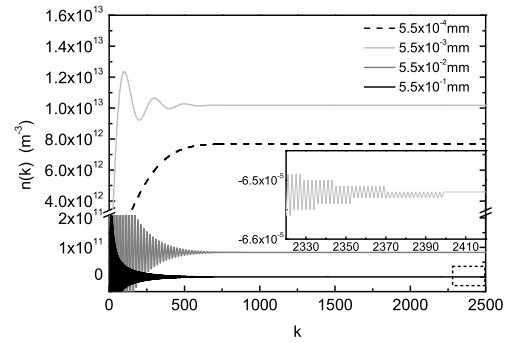
IV.2.4.3 Оптимизиране при планиране на експерименти¹¹.

Както вече беше отбелязано, при измерванията на РБГ чрез абсорбция в поликарбонати, първоначално поликарбонатът се облъчва в среда съдържаща РБГ, след което облъчва-

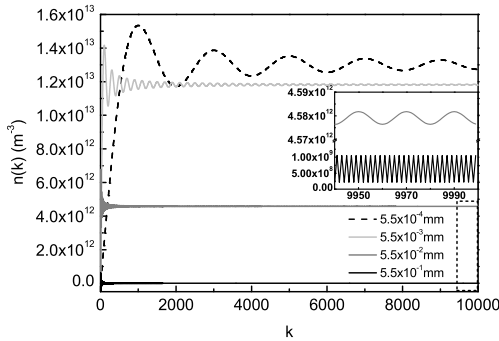
¹¹Част от резултатите, представени в тази секция, са публикувани в библ. изт. [93]



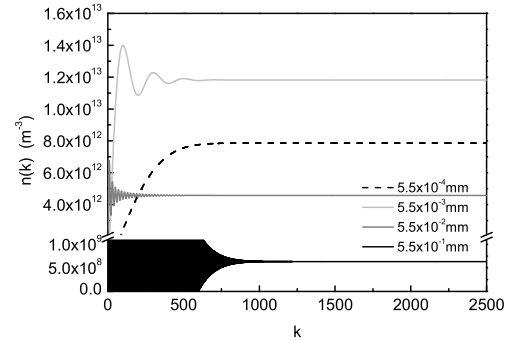
(а) Облъчване с ^{222}Rn във въздух. Сорбция, режим А. $T_s=10\text{h}$.



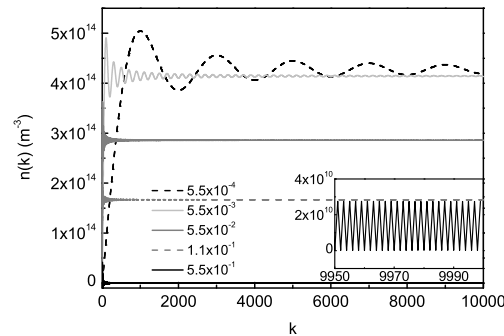
(б) Облъчване с ^{222}Rn във въздух. Десорбция след сорбция, режим А. $T_s=10\text{h}$, $T_d=36\text{s}$.



(в) Облъчване с ^{222}Rn във въздух. Сорбция, режим А. $T_s=1000\text{h}$.

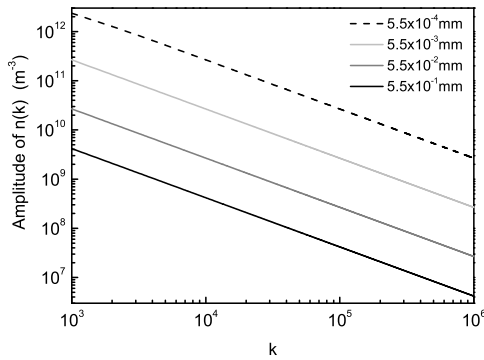


(г) Облъчване с ^{222}Rn във въздух. Десорбция след сорбция, режим А. $T_s=1000\text{h}$, $T_d=36\text{s}$.

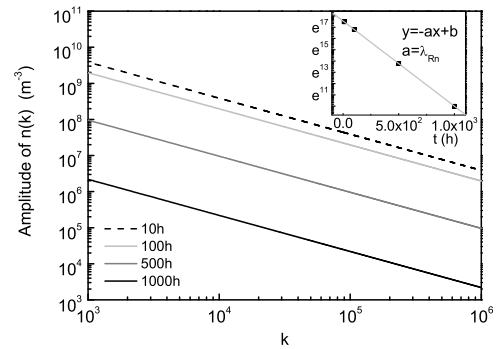


(д) Облъчване с ^{85}Kr във въздух. Сорбция, режим А. $T_s=10\text{h}$.

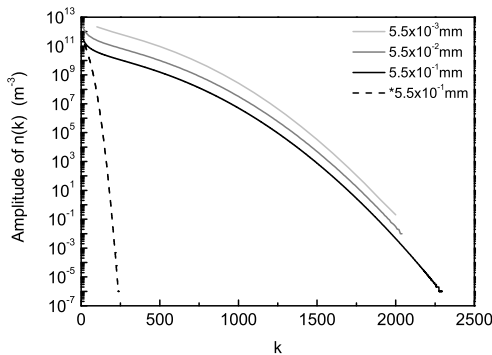
Фигура IV.15: Зависимост на пресметнатата концентрация на РБГ $n(k; X, T_s, T_d)$ от сумационния индекс k (за $k < 10000$) за пластинка с дебелина $L=1.1\text{mm}$ за различни дълбочини X . (а) – При 10 часа сорбция, поради малка дължина на дифузия, концентрацията на ^{222}Rn в средата на пластинката не може да бъде пресметната и (в) – едва при 1000 часа сорбция амплитудата на осцилациите става сравнима с ”истинската” стойност на $n(X, T_s, T_d)$. (д) – За случая на ^{85}Kr , поради голяма дължина на дифузия, след 10 часа сорбция концентрацията му да може да бъде пресметната. (б) – Въпреки много по-бързата сходимост при десорбция, поради ограничение наложено от машинната точност при пресмятанята и малка концентрация на ^{222}Rn в дълбочина на пластинката, концентрацията му не може да бъде пресметната и в режим на десорбция при дадените условия. (г) – За сравнение, при същото време на десорбция, но по-дълго време на сорбция, концентрацията на ^{222}Rn в дълбочина на пластинката е пресметната.



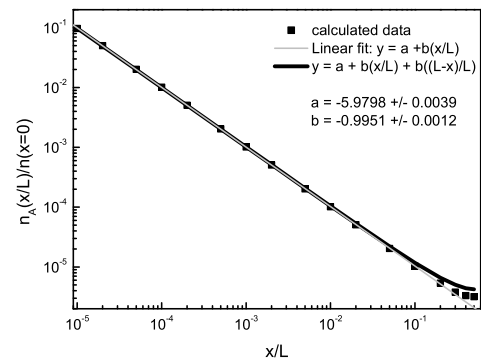
(а) Облъчване с ^{222}Rn във въздух. Сорбция, режим А. $T_s=1000\text{h}$. Съответства на фигура IV.15(в).



(б) Облъчване с ^{222}Rn във въздух. Сорбция, режим Б. $X=0.55\text{mm}$. На малката фигура: Зависимост на амплитудата на n от времето на сорбция t_s при фиксирана стойност на k .



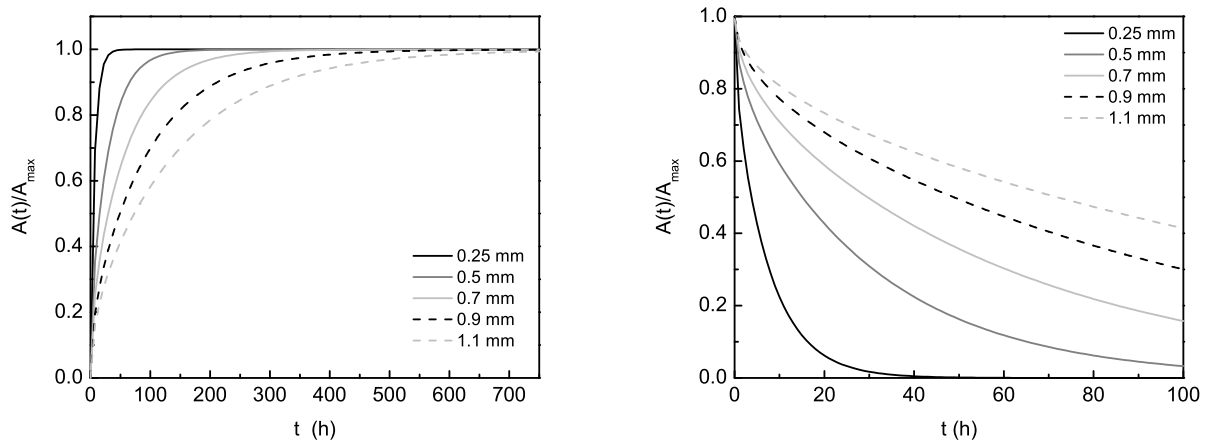
(в) Облъчване с ^{222}Rn във въздух. Десорбция след сорбция, режим А. $T_s=1000\text{h}$, за непрекъснатите линии $T_d=36\text{s}$, а за прекъснатата(*) $T_d=1\text{h}$. Съответства на фигура IV.15(г).



(г) Облъчване с ^{222}Rn във въздух. Сорбция, режим А. $T_s=1000\text{h}$, $k=10^5$. Сива линия – линейен фит по пресметнатите стойности в интервала $0 < x/L < 0.3$. Черна линия – сума от две линейни зависимости, отразяваща симетрията на $n_A(x/L)$ спрямо $x/L=0.5$.

Фигура IV.16: Зависимости на амплитудата $n_A(k, x)$, с която концентрация на РБГ $n(k; X, T_s, T_d)$ осцилира около истинската стойност, от сумационния индекс k и дълбочината x за пластинка с дебелина $L=1.1\text{mm}$. (а) и (б) – При сорбция, зависимостта на амплитудата от k в двойно логаритмичен мащаб е линейна, като наклона на правата не зависи от времето на сорбция или вида на РБГ. (б) – В режим на сорбция амплитудата $n_A(t_s)$ следва зависимостта на концентрацията на РБГ в околната среда от времето на десорбция t_s . В частност, при облъчване в режим Б амплитудата $n_A(t_s)$ намалява с времето на сорбция, следвайки експоненциалната зависимост на намаляване на концентрацията на РБГ в околната среда. (в) – В режим на десорбция амплитудата намалява много по-бързо отколкото при сорбция, като в полулогаритмичен мащаб, при k по-голямо дадена стойност, зависимостта се описва добре с полином от втора степен. С увеличаване на времето на десорбция, сумата схожда по-бързо. (г) – В двойно логаритмичен мащаб зависимостта $n_A(x/L)$ в интервала $0 < x/L < 0.5$ и $n_A((L-x)/L)$ в интервала $0.5 < x/L < 1$ е близка до линейна. Поради симетрията спрямо $x/L=0.5$ на фигурата е представена зависимостта в интервала $0 < x/L < 0.5$.

нето се прекратява и известно време след това се измерва сигналът от разпадането на абсорбирания в поликарбоната РБГ. Този сигнал или активността на абсорбирания РБГ (двете величини са свързани) зависи от времето на облъчване t_s , времето от края на облъчването до началото на измерването t_d , продължителността на измерването t'_d и дебелината на пластинката L . Разбира се, зависи и от коефициента на разпределение K и дължината на дифузия L_D , но те са фиксирани за конкретния РБГ за конкретното измерване. Зависимостта на измервания сигнал от t_s , t_d , t'_d , L позволява оптимизиране при планиране на условията на облъчване и измерване, с цел подобряване резултата от измерването. Компютърният код, представен по-горе, позволява да се правят бързи и точни пресмятания, като се варира всяка от тези величини. По този начин може предварително да се оптимизират условията на облъчване и измерване, като се налагат условия, свързани например с налични поликарбонати, разполагаемо време за облъчване и/или измерване, режим (А или Б) на облъчване, геометрия на измерване и т.н.



Фигура IV.17: Зависимост на пресметнатата абсорбирана активност на ^{85}Kr от времето на сорбция $A(t_s)$ (ляво) и от времето на десорбция $A(t_d)$ (дясно) след достигане на хомогенно разпределение в пластинки с различна дебелина. Пресмятанията са за облъчване при режим А. Активността и в двата случая е нормирана към максималната абсорбирана активност във всяка пластинка, съответстваща на хомогенно разпределение.

На фигура IV.17 е показана зависимостта на абсорбирана активност на ^{85}Kr от времето на сорбция $A(t_s)$ и от времето на десорбция $A(t_d)$ след достигане на хомогенно разпределение в пластинки с различна дебелина, нормирани към максималната абсорбирана активност в съответната пластинка. От фигурата се вижда че, ако трябва да се облъчва кратко време, по-добре е да използват по-тънки пластинки. От друга страна, ако измерването не може да започне скоро след края на облъчването, то при използване на по-тънки пластинки измерването може да бъде провалено, поради пълна загуба на аб-

сорбираната активност. Освен това, за всяка дебелина може да се определи максимално време на облъчване, при което се достига максимална активност и по-дълго облъчване би довело до увеличаване на абсорбираната активност.

Оптимизирането е от особена важност при облъчване в режим Б. В режим Б, поради намаляване на активността в околната среда, съществува оптимално време на облъчване, при което се достига максимум на абсорбираната активност и по-дълго облъчване води до намаляване на абсорбираната активност. На фигура IV.13(e) е показан случай на облъчване с ^{133}Xe в режим Б, при който времето за облъчване е близко до оптималното. От фигурата се вижда, че съществува времеви интервал, в които абсорбираната активност не се изменя съществено и времето за облъчване може да бъде подбрано в този интервал. Друг пример, от реален експеримент, е демонстриран на фигура IV.10. На нея е показана зависимостта на абсорбираната активност от времето за сорбция и десорбция при експеримента по определяне на коефициента на дифузия и коефициента на разпределение на ^{222}Rn за различни полимерни материали, описан в секция IV.2.3.3. На фигурата се вижда, че за материали В и С оптималното време за облъчване е надвишено, а за материал А и 0.25mm пластинки Makrofol – не е достигнато. Това се дължи на факта, че за материали В и С отношението L_D/L е по-голямо в сравнение с това за материал А и Makrofol, поради което ^{222}Rn се абсорбира относително по-бързо в материали В и С, респ. оптималното време за облъчване е по-малко. Все пак времето за облъчване е подбрано оптимално, така че и за четирите материала сигналът е близо до максималния.

IV.2.4.4 Оценка на минималната детектируема активност при измерване на ^{133}Xe във въздух чрез абсорбция в поликарбонати и гама-спектрометрия¹².

При настъпилата на скоро авария в АЕЦ-Фукушима, в много страни от северното полукълбо (вкл. България [120]) бяха измерени повишени концентрации на ^{131}I и ^{137}Cs [23]. Въпреки прогнозите¹³ от глобални атмосферни модели за значително повишаване на концентрация на ^{133}Xe [96], информация за завишени концентрации на ^{133}Xe , беше представена [24, 25] (максимални измерени концентрации в диапазона $30 \div 70 \text{Bq/m}^3$, при фонова концентрация $\sim 10^{-1} \text{mBq/m}^3$). Липсата на информация за концентрациите на ^{133}Xe в атмосферата в близост до авариралата централа, както и в отдалечени, потенциално засегнати райони, се дължи на липсата на прости и евтини методи за измерване на ^{133}Xe в

¹²Резултатите, представени в тази секция, са публикувани в библ. изт. [97]

¹³Прогнозите на Weather Online [96] показваха, че радиоактивен облак с концентрация на $^{133}\text{Xe} \sim 10^2 \text{Bq/m}^3$ ще достигне западното крайбрежие на Северна Америка няколко дни след аварията.

атмосферата (виж Секция II.3.2.3 и библи. изт. [24]). Това мотивира оценяването на MDAC при измерване на ^{133}Xe във въздух чрез абсорбция в поликарбонати и гама-спектрометрия.

При облъчване на поликарбонатна пластинка в ^{133}Xe съдържаща атмосфера, обемната активност $A_V^{pc}(t_s, t_d)$ на ^{133}Xe , абсорбирана в поликарбоната, може да се представи като (виж уравнение IV.21):

$$A_V^{pc}(t_s, t_d) = K A_V f(t_s, t_d), \quad (\text{IV.40})$$

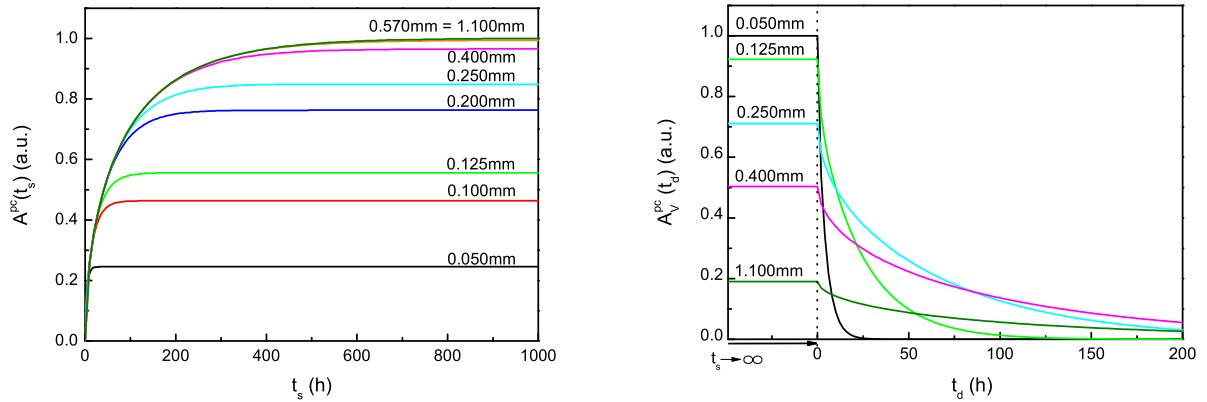
където t_s и t_d са времената на сорбция и десорбция, $f(t_s, t_d)$ е времевата зависимост от уравнение IV.22, A_V е обемната активност на ^{133}Xe в атмосферата, а K е коефициентът на разпределение на ксенон на границата поликарбонат/въздух. Тогава, ако средната обемна активност¹⁴ $\overline{A_V^{pc}}(t_s, t_d, t_m)$ на ^{133}Xe в пластинката се определи след гама-спектрометрично измерване с продължителност t_m , то активността във въздуха може да се определи като:

$$A_V = \frac{1}{K} \frac{\overline{A_V^{pc}}(t_s, t_d, t_m)}{1/t_m \int_{t_d}^{t_d+t_m} f(t_s, \tau_d) d\tau_d} \quad (\text{IV.41})$$

Тази зависимост всъщност свързва и съответните $MDAC - MDAC_{pc}(t_m)$ определена при гама-спектрометрично измерване на поликарбонатни пластинки при конкретни условия на облъчване и измерване и съответстващата ѝ $MDAC_{air}(t_m)$ на метода за ^{133}Xe във въздух, която търсим. Тъй като $MDAC_{pc}(t_m)$, освен от времето за измерване, зависи и от времената на сорбция и десорбция, дебелината на пластинките и геометрията на измерване, оценката на $MDAC_{pc}(t_m)$ е направена при следните условия:

1. Поликарбонатни пластини с дебелини между 0.05mm и 0.40mm се облъчват различно, фиксирано време в атмосфера с постоянна концентрация A_V на ^{133}Xe . Поликарбонати с дебелина по-голяма от 0.40mm не са подходящи, поради малката дължина на дифузия на ^{133}Xe в поликарбоната (виж фигура IV.18). Времената за облъчване са 1, 2, 4 дни и безкрайно, т.е. до достигане на равновесна концентрация на абсорбирания ^{133}Xe . Първите три времена са подбрани за оценка на MDAC в реални условия, а последното – за да се оцени минималната достижима стойност на MDAC;

¹⁴Тъй като при гама-спектрометричните измервания активността е пропорционална на чистия брой импулси в пика на пълно поглъщане, натрупани за времето за измерване, то активността, която се определя, всъщност е осреднената за времето на облъчване активност.



Фигура IV.18: Зависимост на активността, абсорбирана в поликарбонатни пластинки с различни дебелини, облъчени при една и съща обемна активност на ^{133}Xe във въздух. (ляво) Зависимост на активността в пластинки с различни дебелини, но с едни и същи други размери. При дебелина по-голяма от $\sim 0.4\text{mm}$ абсорбираната активност е практически една и съща. (дясно) Обемна активност в пластинките в режим на десорбция, след сорбция до достигане на равновесна активност. Въпреки че активността в най-тънките пластинки е най-малка, обемната активност в тях (активността на единица обем) се оказва най-голяма. При гама-спектрометричните измервания се определя средната за времето на измерване обемна активност, т.е. площта под кривата на десорбция.

2. След облъчването, поликарбонатните пластини се измерват гама-спектрометрично и се оценява обемната активност на ^{133}Xe . За анализа се използва γ -линията на ^{133}Xe с енергия 81keV . Поликарбонатните пластини са изрязани с такава форма, че добре изпълват три съда, за които е калибриран HPGe детектор (50mL цилиндър и 450mL и 1000mL Marinelli). Използваният HPGe детектор е с производител ORTEC, ефективност 24.9% и разделителна способност 1.9keV за гама-линията с енергия 1332keV на ^{60}Co ;
3. Оценката на $MDAC_{pc}(t_m)$ е направена на базата на *a priori* оценка на нивото на детектиране L_d [110]. Оценката на $L_d(t_m)$ като функция на времето за измерване е направена като е оценено $L_d(T_m)$ на базата на фонов спектър, набран за време $T_m=417\text{h}$ и е използвана връзката¹⁵ $L_d(t_m) \sim \sqrt{1/t_m}$:

¹⁵При *a priori* оценка на нивото на детектиране, то зависи само от неопределеността на фоновата скорост на броене $L_d \sim \sigma(c_b)$ в областта на интерес (81keV). Неопределеността на фона може да се представи като $\sigma(c_b) = \sqrt{c_b/t_m}$, където c_b е фоновата скорост на броене. Следователно $L_d(t_m) \sim \sqrt{1/t_m}$.

$$L_d(t_m) = L_d(T_m) \sqrt{\frac{T_m}{t_m}} \quad (\text{IV.42})$$

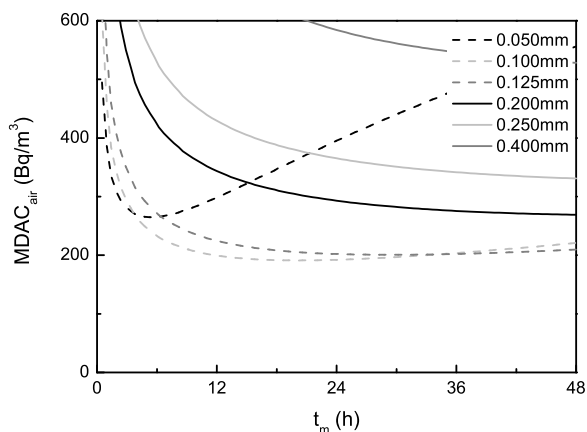
Като се използва връзката $MDAC_{pc}(t_m) = L_d(t_m)/(\varepsilon\eta)$, за $MDAC_{air}(t_m)$ получаваме:

$$MDAC_{air}(t_m) = \frac{1}{K} \frac{\frac{L_d(T_m)}{\varepsilon\eta} \sqrt{\frac{T_m}{t_m}}}{\frac{1}{t_m} \int_{t_d}^{t_d+t_m} f(t_s, \tau_d) d\tau_d}, \quad (\text{IV.43})$$

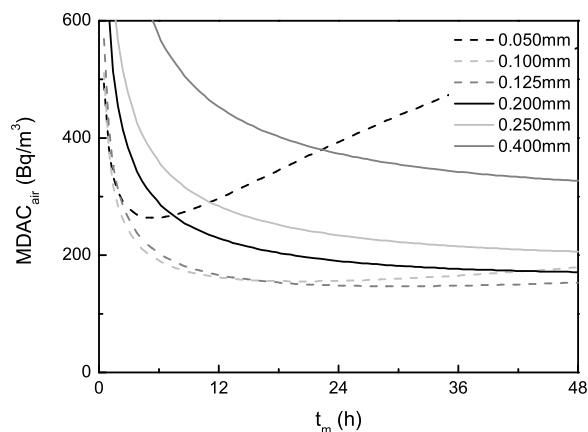
където ε е ефективността за регистрация на γ -квантите на ^{133}Xe с енергия 81keV при дадените условия на измерване, а η е квантовия добив на γ -квантите с тази енергия. Функцията $\int_{t_d}^{t_d+t_m} f(t_s, \tau_d) d\tau_d$ е пресметната с компютърния код, представен в секция IV.2.4.

На фигура IV.19 са показани пресметнатите зависимости $MDAC_{air}(t_m)$ при измерване на пластинките в геометрия 1L Marinelli, за която се постига най-ниско MDAC. Зависимостите за другите две геометрии не са показани, т.к. зависимостта $MDAC_{air}(t_m)$ е същата с точност до умножение по константа. От фигурата се вижда, че най-ниско MDAC се постига с поликарбонатните пластини с дебелина между 0.1mm и 0.25mm, като по-тънките са подходящи за по-кратки облъчвания, а по-дебелите – за по-продължителни облъчвания.

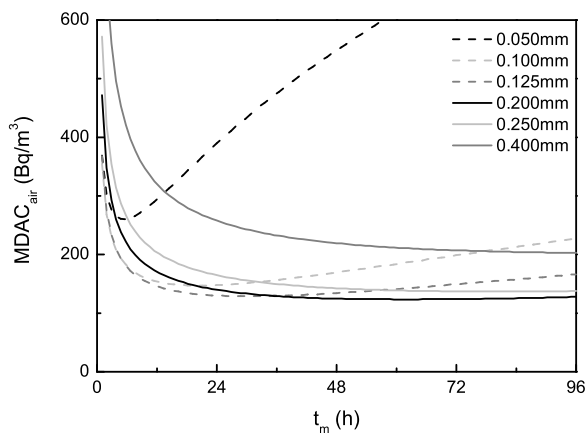
В таблица IV.6 са дадени минималните стойности на $MDAC_{air}$ за трите геометрии на измерване, както и условията при които са получени. При двете геометрии Marinelli оцененото $MDAC_{air}$ е от порядъка на 100-250Bq/m³, което е сравнимо с прогнозите на Weather Online и измерените максимални стойности на концентрациите на ^{133}Xe в атмосферата в Северна Америка, в следствие на аварията в АЕЦ-Фукушима [24, 25]. Това показва, че методът има потенциал за прилагане при установяване на последиците от големи ядрени аварии. Въпреки че при по-малката геометрия (50mL), $MDAC_{air}$ е по-високо, тя е по-лесна за реализиране и може да бъде прилагана при измервания по-близо до източника. Допълнително, $MDAC_{air}$ може да се подобри ако се използва, например, детектор с по-добра ефективност.



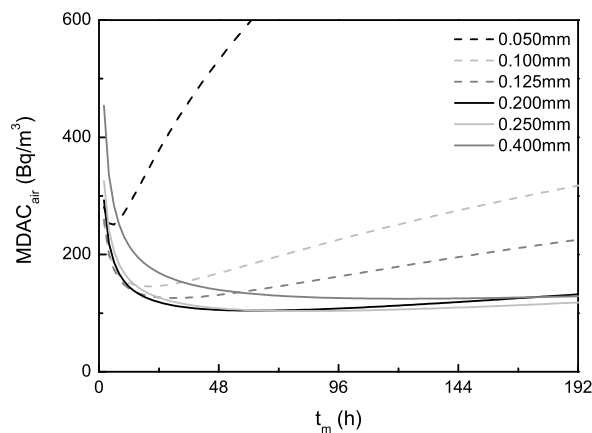
(а) Време на облъчване $t_s=24\text{h}$ (1d)



(б) Време на облъчване $t_s=48\text{h}$ (2d)



(в) Време на облъчване $t_s=96\text{h}$ (4d)



(г) Време на облъчване $t_s \rightarrow \infty$ (до достигане на равновесна концентрация на ^{133}Xe)

Фигура IV.19: Зависимост $MDAC_{air}(t_m)$ при измерване на ^{133}Xe във въздух. Пластинки с дебелини от 0.05mm до 0.40mm са облъчвани за различно време при постоянна концентрация на ^{133}Xe и измерени гама-спектрометрично веднага след края на облъчването ($t_d=0$) в геометрия 1L Marinelli с помощта на HPGe детектор с относителна ефективност 24.9%.

Таблица IV.6: Стойности на MDAC при измерване на ^{133}Xe във въздух чрез абсорбция в поликарбонати и последващо гама-спектрометрично измерване. В таблицата са дадени минималните стойности $MDAC_{air}$, които могат да бъдат достигнати с наличната апаратура, както и условията (време на облъчване и измерване и дебелина на поликарбонатните пластинки) при които се достигат.

Условия на облъчване и измерване				
Време на облъчване, t_s	24h (1d)	48h (2d)	96h (4d)	* $t_s \rightarrow \infty$
Дебелина на пластинките, L	0.1mm	0.125mm	0.125-0.2mm	0.2-0.25mm
Време за измерване, t_m	15-24h	24-36	24-48	48-110
Геометрия на измерване	$MDAC_{air}$, (Bq/m ³)			
50mL цилидър	1260	1000	850	660
450mL Marinelli	260	200	170	135
1000mL Marinelli	200	150	130	100

* Времето на сорбция за достигане на 95% от равновесната активност в поликарбонати с дебелина 0.2-0.25mm е 140-190h

IV.3 Разработване и валидиране на числен подход за определяне на ефективността при измерване на бета-радиоактивни благородни газове¹⁶

Измерванията на бета-радиоактивни благородни газове (бета-РБГ) чрез абсорбция в поликарбонати и последваща регистрация на излъчените бета-частици са важна част от поликарбонатния метод. В случая на измерване на концентрациите на ^{222}Rn във води, това е бърз и лесен за прилагане метод, с достатъчно ниско MDAC (20Bq/L) [16], удовлетворяващо нормите за концентрация на ^{222}Rn в питейни води (100Bq/L), препоръчани от комисията на европейската общност [12]. Методът също е подходящ за измерване на ^{222}Rn в почвен газ, като позволява измервания в целия диапазон от концентрации характерни за ^{222}Rn в почвен газ. От друга страна, ^{85}Kr е бета- и гама-излъчващ РБГ и концентрациите му могат да бъдат измервани гама-спектрометрично или чрез регистрация на бета-частиците му, както беше показано в секция IV.1. Малкият квантов добив (около 0.4%) на гама-линията му 514keV прави гама-спектрометричните измервания неподходящи за измерване на ниски концентрации. Поради това бета-измерванията са по-подходящи за измерване на ^{85}Kr .

¹⁶Резултатите представени в тази секция са публикувани в библ. изт. [121, 122]

При досегашните измервания на бета-РБГ чрез абсорбция в поликарбонати е спазван стриктен контрол върху условията на облъчване и измерване като: време на облъчване, начало и продължителност на измерването, размери на поликарбонатите. Това се налага поради зависимостта на ефективността при измерването ε (величината, свързваща измерения сигнал и абсорбираната в поликарбонатната пластинка¹⁷ активност) от тези величини. Затова целта, която си поставяме в тази секция, е да се изследва зависимостта на ефективността при измерване на бета-РБГ $\varepsilon(L, t_s, t_d)$ от времето на сорбция t_s и десорбция t_d и от дебелината на поликарбонатната пластинка L .

По дефиниция, ефективността при измерването ε представлява отношението на чистата скорост на броене на детектора c_0 и измерваната активност A :

$$\varepsilon = \frac{c_0}{A}, \quad (\text{IV.44})$$

Ефективността при измерването може да се представи като произведение от ефективността за излъчване на частици от едната повърхност на източника ϵ_s и ефективността за регистрация на детекторната система при дадената геометрия на измерване ϵ_d :

$$\varepsilon = \epsilon_s \epsilon_d = \frac{q_{2\pi}}{A} \frac{c_0}{q_{2\pi}}, \quad (\text{IV.45})$$

където $q_{2\pi}$ е скоростта на излъчване на частици от повърхността на пластинката, обърната към детектора. Трудността при изследване на ε се дължи на следните причини:

1. Ефективността на излъчване на източника ϵ_s зависи от енергийния бета-спектър на конкретния РБГ, от дебелината на поликарбонатната пластинка и от разпределението на РБГ в нея. От своя страна това разпределение е функция на времето на сорбция и десорбция и на дебелината на пластинката $n(x, t_s, t_d)$, както беше показано в секция IV.2.1.
2. Ефективността на детектора ϵ_d за конкретната геометрия на измерване зависи от енергийния спектър на излъчваните бета-частици, който също зависи от разпределението $n(x, t_s, t_d)$ на РБГ в поликарбоната.

Това прави експерименталното изследване на $\varepsilon(L, t_s, t_d)$ трудна и времеемка задача, като получените зависимости $\varepsilon(L, t_s, t_d)$ биха били ограничени за краен брой стойности на t_s , t_d и L . Затова задачата, която си поставихме с цел изследване на $\varepsilon(L, t_s, t_d)$ е "Разработване и валидиране на числен подход за определяне на ефективността при измерване на

¹⁷При експериментите представени в тази секция са използвани само поликарбонати с форма на пластинка. Това беше наложено от удобство при измерванията с наличната апаратура.

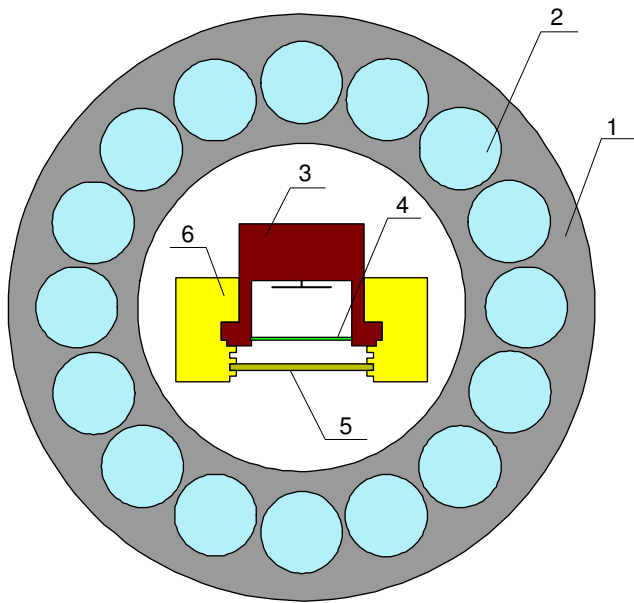
бета-радиоактивни благородни газове.” Голямото предимство на този подход е, че ефективността може да бъде определена за произволни стойности на t_s , t_d и L и условия на измерване. Решаването на задачата¹⁸ беше разделено на няколко стъпки: Първо, с помощта на компютърния код, описан в секция IV.2.4, бяха получени дълбочинни разпределения $n(x, t_s, t_d)$ на концентрациите на ^{85}Kr и ^{222}Rn . Второ, тези разпределения, енергийните бета-спектри съответно на ^{85}Kr и на ^{214}Pb и ^{214}Bi [123], както и детайлно описание геометрията на измерване бяха използвани в Монте Карло симулации с кода PENELOPE v.2006 [124] с цел определяне на $\varepsilon(L, t_s, t_d)$. Трето, беше определена ефективността за регистриране на алфа-частици на установката за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500. Четвърто, беше определена ефективността при регистриране на експерименталната установка (УМФ-1500) и получените резултати бяха сравнени с Монте Карло резултатите за двата РБГ.

При първата стъпка бяха пресметнати профили на разпределението $n(x, t_s, t_d)$ на ^{85}Kr и ^{222}Rn в поликарбонатни пластинки за различни стойности на t_s , t_d и L . Стойностите бяха подбрани, така че да съответстват на проведените експерименти, описани в секция IV.3.3. Върху изпълнението на тази стъпка няма да се спираме т.к. тя е подробно описана в секция IV.2.4.

IV.3.1 Монте Карло симулации с кода PENELOPE

PENELOPE е компютърен код, разработен на езика FORTRAN 77, позволяващ Монте Карло симулации на транспорт на електрони, позитрони и фотони в сложни геометрии със зададен материален състав [125, 124]. Кодът също така позволява детайлна, удар-удар симулация на транспорта на електрони с проследяване на историята на събитията [124, 126, 127], каквато беше използвана при проведените от нас симулации. Този код е един от най-използваните за симулиране транспорта на гореизброените частици. Кодът е валидиран както от авторите му [125] и така и от други автори [128, 127]. Пакетът PENMAIN от PENELOPE, който е използван при по-нататъшните симулации, позволява симулации в зададена от потребителя геометрия, при което всеки обект се задава като материал, заграден от квадратични повърхности. Материалът може да бъде избран от предварително зададени материали или да бъде зададен като смес от атоми в дадено съотношение и с дадена плътност. Тази възможност на PENMAIN беше използвана и беше описана детайлно геометрията на измерването (включително геометрията на детектора, фигура IV.20) при експериментите представени в секция IV.3.3.

¹⁸Въпреки че тук задачата е решена за конкретна детекторна система, този подход позволява обобщаване на произволна детекторна система с известна геометрия.



Фигура IV.20: Схема на детекторната система. Установка за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500. 1. пасивна оловна защита; 2. активната защита от цилиндрични ГМ-броячи; 3. детектор (камбановиден ГМ-брояч с входящ прозорец); 4. входящ прозорец на детектора; 5. прободържател; 6. държател на детектора с фиксирани позиции за прободържателя. При описание на геометрията на измерване, използвана за Монте Карло симулациите, защитата на детектора не е включена (на схемата 1. и 2.), т.к. не оказва съществено влияние при симулациите.

При Монте Карло симулациите началните позиции на бета-частиците в поликарбонатната пластинка бяха случайно генерирани, като за разпределение по дълбочината на пластинката бяха използвани профилите $n(x, t_s, t_d)$, пресметнати в първата стъпка, а за разпределение в равнината на пластинката (другите две направления) – хомогенно. Началните енергии на частиците бяха генерирани според справочникови данни [123] за бета-спектрите на съответните нуклиди. В случая на ^{222}Rn , при който има два бета-излъчващи нуклида, за всеки от случаите бяха провеждани поотделно симулации за ^{214}Pb и ^{214}Bi , след което резултатите за двата нуклида бяха сумирани. Информацията, която беше получавана от симулациите, беше:

1. Дълбочинно разпределение на генерираните частици. Това разпределение беше сравнявано със съответния профил $n(x, t_s, t_d)$ с цел контрол при случайното генериране на началните позиции на частиците(фигура IV.21).
2. Енергиен спектър на генерираните частици. Този спектър беше сравняван с оригиналния бета-спектър на съответния нуклид с цел контрол при случайното генериране на началните енергии на частиците(фигура IV.21).
3. Енергиен спектър на частиците, напускащи едната повърхност на пластинката, нормиран на броя първоначално генерирани частици (фигура IV.22). Тази величина всъщност представлява ефективността за излъчване на частици от едната повърхност на източника в единичен енергиен диапазон $\epsilon_{s,i}(E_i)$.
4. Ефективност за излъчване на частици от едната повърхност на източника с енергия по-голяма от дадена прагова енергия E_{thold} като функция на праговата енергия:

$$\epsilon_s(E_{thold}) = \int_{E_{thold}}^{E_{max}} \epsilon_{s,i}(E_i) dE_i, \quad (IV.46)$$

където E_{max} е максималната енергия на бета-частиците.

5. Енергиен спектър на частиците, попадащи в активния обем на детектора, нормиран на броя първоначално генерирани частици (фигура IV.22). Тази величина представлява ефективността $\epsilon_i(E_i)$ за регистриране на бета-частици с енергия E_i .
6. Ефективност за регистриране на бета-частици с енергия по-голяма от дадена прагова енергия E_{thold} като функция на праговата енергия:

$$\varepsilon(E_{thold}) = \int_{E_{thold}}^{E_{max}} \varepsilon_i(E_i) dE_i \quad (IV.47)$$

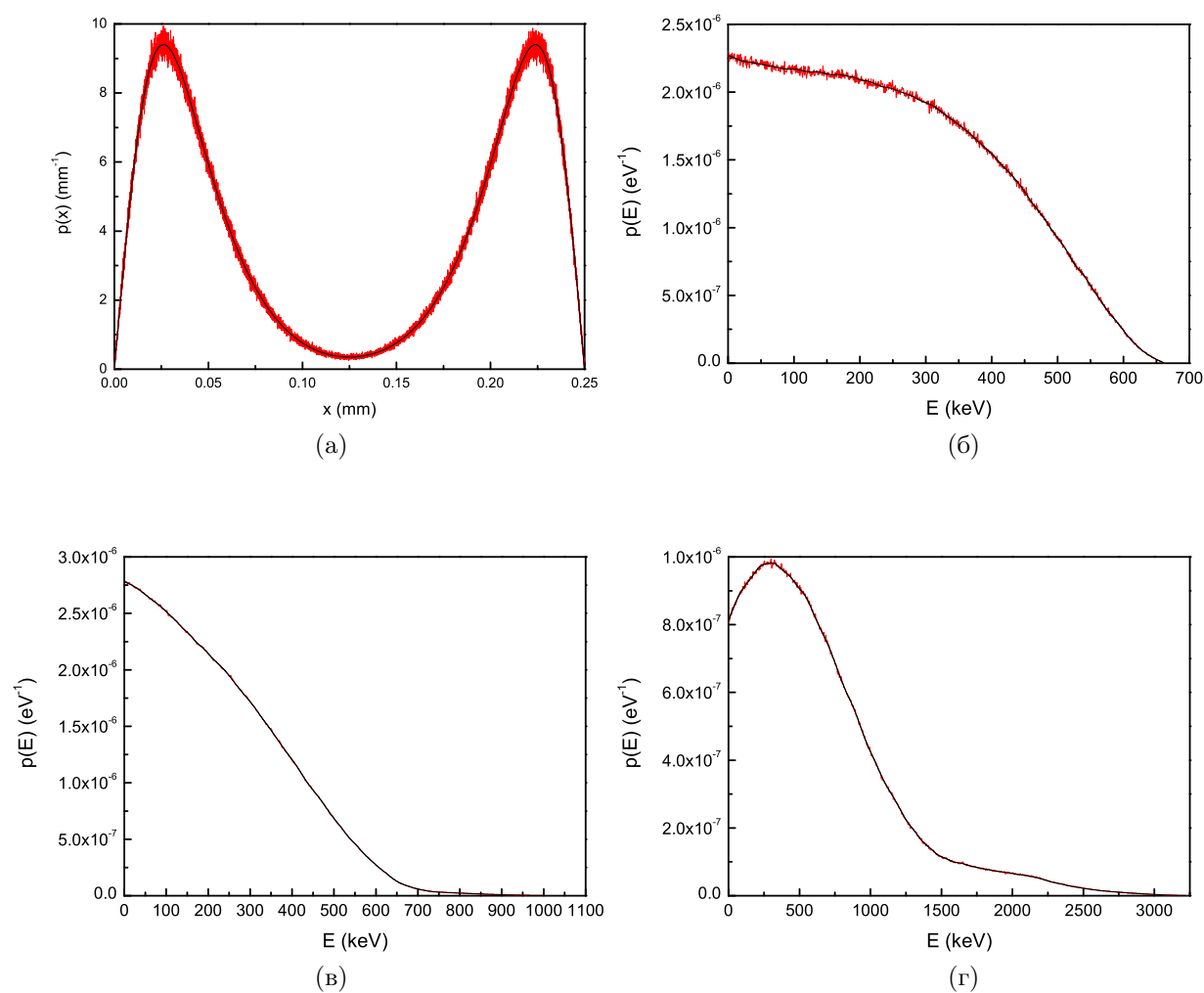
При представените тук изследвания на $\varepsilon(L, t_s, t_d)$ не беше поставян праг по енергии ($E_{thold}=0$), т.е. всички бета-частици, попадащи в активния обем на детектора се регистрират.

IV.3.2 Определяне на ефективността за регистриране на алфа-частици на установката за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500

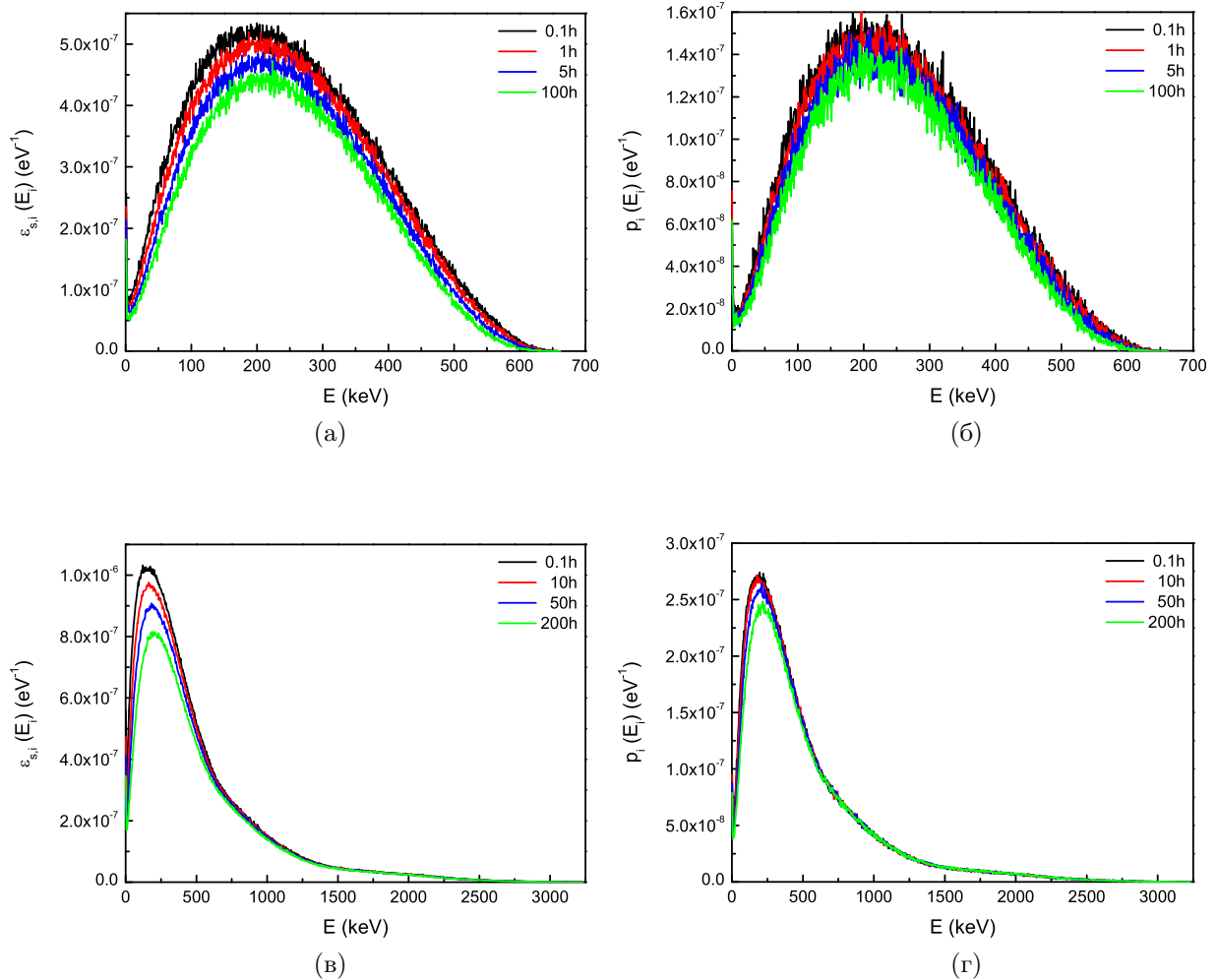
Тази стъпка беше необходима за случая на ^{222}Rn , т.к. ^{222}Rn и КПП (^{218}Po и ^{214}Po) са алфа-лъчители, а детекторът на използваната експериментална установка (фигура IV.20) е чувствителен и към алфа-частици. Идеята за определяне на ефективността ε_α за регистриране на алфа-частици беше, тя да се представи като сума от произведението на ефективностите $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$ за регистрация на алфа-частици, излъчени от тънък слой Δx , на дълбочина x_i в пластинката и вероятността $\eta(x_i)$ за излъчване на алфа-частица от съответния слой:

$$\varepsilon_\alpha = \sum \varepsilon_{\alpha,i}(x_i) \eta(x_i) \quad (IV.48)$$

Вероятността $\eta(x_i)$ всъщност представлява нормираното към единица дълбочинно разпределение $n(x, t_s, t_d)$ на ^{222}Rn в поликарбонатната пластинка, затова тук няма да представяме нейното определяне. Тогава, за определяне на ε_α е необходимо да определим само $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$.



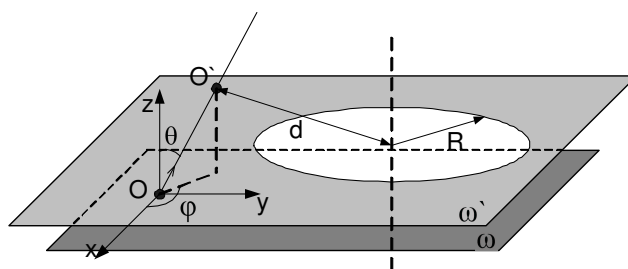
Фигура IV.21: Сравнение между начални разпределения, използвани като вход при Монте Карло симулациите и генерираните при симулациите разпределения. (а) – Сравнение между профил на разпределение $n(x, t_s, t_d)$ на ²²²Rn и дълбочинното разпределение на генерираните бета-частици при Монте Карло симулациите. (б), (в), (г) – Сравнение между теоретичните бета-спектри на ⁸⁵Kr ²¹⁴Pb и ²¹⁴Bi и съответните начални енергии на генерираните бета-частици при Монте Карло симулациите.



Фигура IV.22: Энергийни спектри на бета-частиците, нормирани на броя генерирани частици, получени при Монте Карло симулациите. (а) Спектър на частиците, напускащи повърхността на пластинката при симулации с ^{85}Kr . (б) Спектър на частиците, попадащи в активния обем на детектора при симулации с ^{85}Kr . (в) Спектър на частиците, напускащи повърхността на пластинката при симулации с ^{214}Pb и ^{214}Bi . (г) Спектър на частиците, попадащи в активния обем на детектора при симулации с ^{214}Pb и ^{214}Bi . Спектрите за ^{214}Pb и ^{214}Bi са сума от спектрите получени за ^{214}Pb и ^{214}Bi поотделно.

За определяне на $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$ беше използван числен подход, моделиращ процеса на регистриране на алфа-частиците, излъчени от поликарбонатната пластинка. При този подход беше приет опростен модел на разпространение на алфа-частиците, при който те не се отклоняват от първоначалната си посока на излъчване. Това приближение е достатъчно добро, тъй като, при преминаване през веществото, алфа-частиците търпят основно йонизационни загуби и вероятността за ръдърфордово разсейване е малка. Това позволява, при моделирането на детекторната система, тя да бъде опростена и представена само като източник, входящ прозорец на детектора и слой въздух между източника и прозореца на детектора (фигура IV.23). Тогава, за да бъде регистрирана една излъчена от източника алфа-частица е необходимо:

1. да бъде излъчена по посока на входящия прозорец на детектора;
2. енергията ѝ и съответно пробегът ѝ да е достатъчно голям за да премине през прозореца на детектора.



Фигура IV.23: Модел на детекторната система, възприет при определяне на $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$. ω и ω' са съответно равнините, определени от източника и прозореца на детектора (кръгът с радиус R). В т. O е генерирана частица, чиято траектория пресича равнината ω' в т. O' .

Тези две условия могат да бъдат записани като:

$$d \leq R \tag{IV.49}$$

и

$$l \leq l_{max}, \tag{IV.50}$$

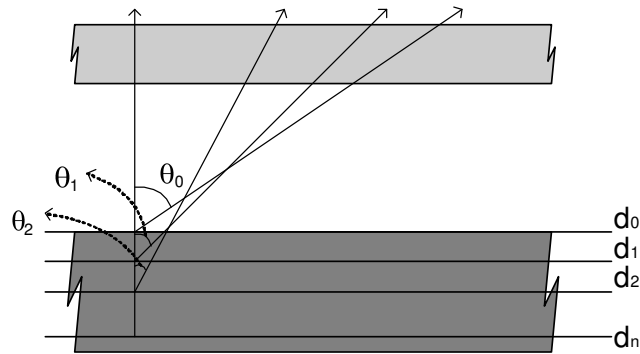
където R е радиусът на прозореца на детектора, d е разстоянието от центъра на прозореца до точката (фигура IV.23), в която траекторията на частицата пресича равнината на прозореца, l е разстоянието, което трябва да измине частицата от раждането си в източника до преминаване през равнината на прозореца, а l_{max} е максималният пробег на частицата. Тъй като:

$$l = \frac{l_0}{\cos \theta}, \quad (\text{IV.51})$$

където l_0 е разстоянието между пластинката и прозореца, за по-нататъшните разглеждания, условието IV.50 за удобство е записано като:

$$\theta \leq \theta_{max} \quad (\text{IV.52})$$

За определяне на θ_{max} е използван свободно достъпния компютърен код SRIM [129]. Кодът позволява различни заредени частици (вкл. алфа-частици) с фиксирана начална енергия да бъдат пуснати да преминават през плоско-паралелни слоеве от различни материали. Посоката на излъчване на частиците спрямо повърхността на слоевете също може да бъде променяна. Това позволява определянето на θ_{max} (означени на фигура IV.24 като θ_i) за частици, излъчени от различни дълбочини на пластинката (фигура IV.24).

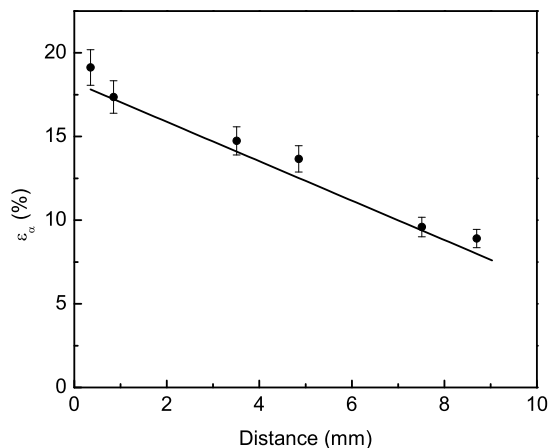


Фигура IV.24: Определяне на θ_{max} за алфа-частици, излъчени от различни дълбочини d на поликарбоната. $\theta_{max}=0$ съответства на максималната дълбочина d_n , от която могат да бъдат регистрирани алфа-частици със съответната енергия.

За пресмятане на $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$, моделът, описващ детекторната система, представен по-горе и илюстриран на фигура IV.23, е имплементиран в Монте Карло компютърен код. В кода са описани размерите на източника и прозореца на детектора. Така, при зададени от потребителя разстояние източник-детектор l_0 и максимален ъгъл θ_{max} , кодът пресмята каква част от генерираните частици преминават през прозореца на детектора, т.е. биват регистрирани. Пресмятането става като в равнината на източника хомогенно се генерират частици с изотропно разпределена посока на излъчване. След това, спрямо ъгъла, под който е излъчена частицата спрямо оста Z (фигура IV.23), се налага условието IV.52. Ако го удовлетворява, се пресмята пресечната точка на посоката на излъчване на частицата и равнината на прозореца на детектора и разстоянието d между центъра на прозореца и тази точка. Ако d удовлетворява условие IV.49, то частицата се счита за регистрирана. Тогава

отношението на регистрираните към генерираните частици е търсената ефективност за регистрацията $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$.

Преди да бъде използван за пресмятане на ефективността на детекторната система при измервания на ^{222}Rn с поликарбонати, гореизложения алгоритъм беше експериментално валидиран. За целта бяха проведени експерименти с алфа-източник ^{241}Am с известна активност, поставен на различни разстояния от детектора. Получените експериментални резултати за ефективността на детекторната система бяха сравнени с ефективности, пресметнати с кода за дадените условия на измерване (вкл. точно описана геометрия на източника). Важно е да се отбележи, че след определяне на ъглите θ_i , при пресмятането на ефективностите нямаше свободни параметри. При сравнението (фигура IV.25) се наблюдава много добро съвпадение.



Фигура IV.25: Сравнение между ефективностите на детекторната система при измерване на алфа-източник ^{241}Am , получени експериментално (символите) и числено определени (линията).

Това ни позволи да определим зависимостта $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$ за ^{222}Rn . Тъй като ^{222}Rn и КНР (^{218}Po ^{214}Po) излъчват алфа-частици с различни енергии, ъглите θ_i бяха определени за алфа-частиците и на трите нуклида. След това бяха определени съответните зависимости $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$, показани на (фигура IV.26). Това позволи да бъде направено и още едно сравнение: с помощта на SRIM беше определена максималната дълбочина, от която алфа-частици със съответните енергии могат да бъдат регистрирани и тази дълбочина беше сравнена с оценката, получена при екстраполиране на линейните зависимости на $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$. При това сравнение също беше наблюдавано добро съвпадение (таблица IV.7).

Така определените зависимости $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$ за трите алфа-емитера, заедно с пресметнатите профили на разпределение $n(x, t_s, t_d)$, нормирани към единица $\eta(x_i)$, бяха използвани за определянето на ефективност на детекторната система ε_{α} (формула IV.48). Тъй като $\eta(x_i)$ (т.е. $n(x, t_s, t_d)$) е функция на L , t_s и t_d , то и ефективността $\varepsilon_{\alpha}(L, t_s, t_d)$ също е функция на тези величини. Зависимостта $\varepsilon_{\alpha}(L, t_s, t_d)$ беше изследвана (фигура IV.27), като при пресмятането по формула IV.48 бяха използвани профили на разпределението за

Фигура IV.26: Числено определената ефективност $\varepsilon_{\alpha,i}(x_i)$ на детекторната система в зависимост от дълбочината x , определена за алфа-частиците на трите алфа-емитера.

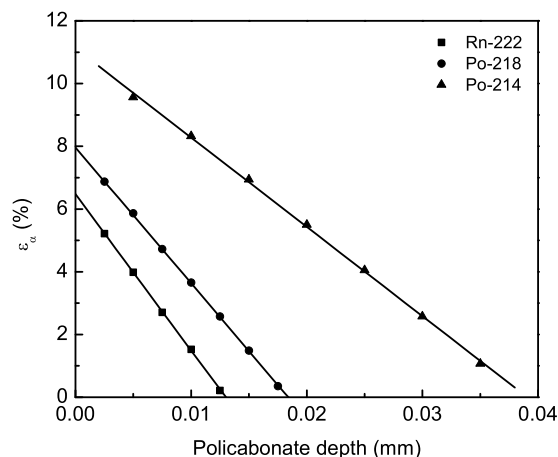


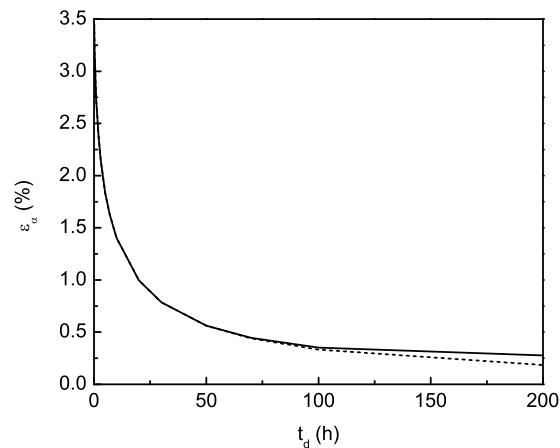
Таблица IV.7: Сравнение между максималните дълбочини, от които могат да бъдат регистрирани съответните алфа-частици, определени със SRIM и чрез екстраполиране на линейните зависимости от фигура IV.26

Нуклид	E_{α} (MeV)	Макс. дълбочина (μm) SRIM	Макс. дълбочина (μm) фигура IV.26	Относителни разлики (%)
^{222}Rn	5.49	12.9	13.0	0.8
^{218}Po	6.00	18.3	18.4	0.5
^{214}Po	7.69	38.6	39.1	1.3

различни стойности на L , t_s и t_d , съответстващи на тези при експериментите представени в секция IV.3.3.

IV.3.3 Експериментално определяне на ефективността при измерване с установката за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500. Сравнение с Монте Карло определените ефективности

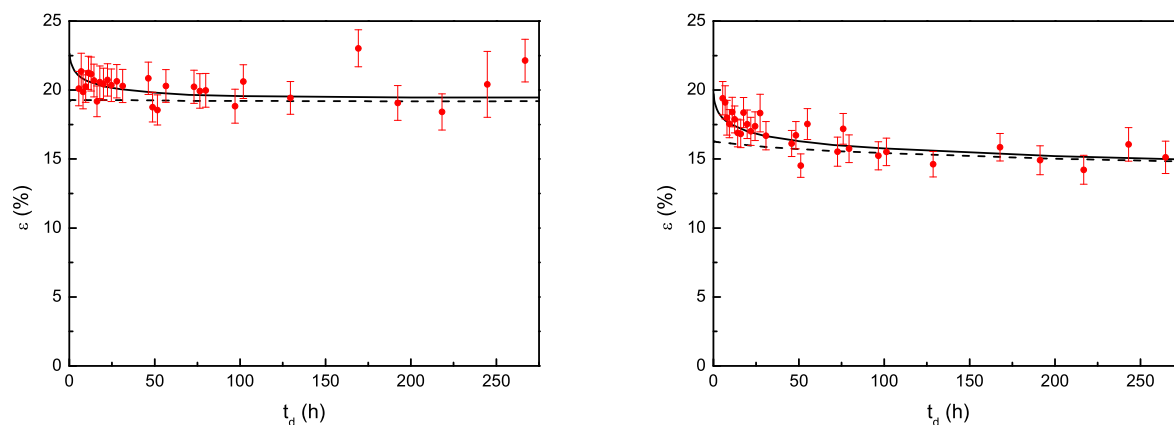
За валидирането на предложения в тази глава подход бяха използвани два експеримента. Първият беше специално планиран и проведен за целите на валидирането. При него за 48h във въздух с начална обемна активност на ^{222}Rn (10.23 ± 0.57) MBq/m³ бяха облъчени поликарбонатни пластинки при режим Б на облъчване. Пластинките бяха с дебелини 0.25mm и 0.70mm и две различни форми – правоъгълник (3.5×4.5)cm и кръг с радиус 3cm. След облъчването сигналът от пластинките беше измерван периодично като правоъгълните пластинки бяха измервани с установка за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500, а кръглите – гама-спектрометрично (HPGe, производител ORTEC, ефектив-



Фигура IV.27: Зависимост от времето на измерване (десорбция) на определената числено ефективност за регистрацията на алфа-частици на ^{222}Rn и КПП при измервания чрез абсорбция в поликарбонати с дебелина 0.25mm (плътна линия) и 0.70mm (прекъснатата линия). Зависимостите са получени за условия, отговарящи на условията при експериментите описани в секция IV.3.3.

ност 24.9% и разделителна способност 1.9keV за гама-линията с енергия 1332keV на ^{60}Co) в геометрия 50mL цилиндър, поставен върху детектора. Измерванията на пластинките с една и съща дебелина бяха провеждани паралелно, така че да може ефективността при бета-измерването (виж формула IV.44) да бъде определена чисто експериментално: чистата скорост на броене c_0 се определя с бета-детектора, а активността A в правоъгълната пластинката по време на измерването се определя от гама-спектрометричното определената активност A_{circ} в кръглите, умножена по отношението на площите на правоъгълната S_{rect} и кръглите S_{circ} пластинки: $A = A_{circ}S_{rect}/S_{circ}$. Така получената зависимост на ефективността от времето на десорбция е независима от теоретичния модел. По този начин се елиминира възможността за корелация между Монте Карло и експериментално определената ефективност. На фигура IV.28 представено сравнение между Монте Карло и експериментално определената при този експеримент ефективност. Вижда се, че в началните часове на десорбция, ефективността за регистриране на алфа-частици има съществен принос към ефективността за регистриране на бета-частици. След отчитането на този принос се наблюдава много добро съвпадение между експериментално и числено определената ефективност.

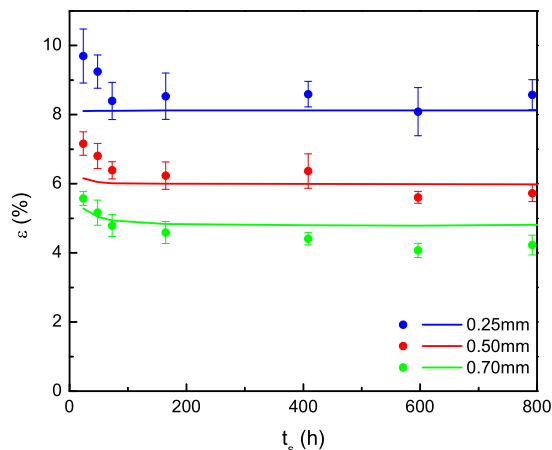
Вторият експеримент всъщност е експеримента по сорбция, описан в секция IV.2.2. При него поликарбонатни пластинки бяха облъчвани за различно време (между 24h и 1248h) при една и съща концентрация на ^{85}Kr (47.4 ± 0.2) MBq/m³. Пластинките бяха правоъгълни (3.5×4.5)cm с дебелини 0.25mm, 0.5mm и 0.70mm. Пластинките бяха измер-



Фигура IV.28: Сравнение между експериментално и Монте Карло получените ефективности на УМФ-1500 при измерване на ^{222}Rn за пластинки с дебелина 0.25mm (ляво) и 0.70mm (дясно). Ефективностите са получени при режим на десорбция след 48h облъчване при режим Б. Със символи са представени експерименталните резултати, с прекъснатата линия Монте Карло получената ефективност за регистриране само на бета-частици, с непрекъснатата линия – Монте Карло ефективността след отчитане на ефективността на УМФ-1500 за регистриране на алфа-частици (фигура IV.27). Неопределеностите на експерименталните точки са на ниво 1σ .

вани веднага след края на облъчването, като се спазваше един и същ ред – от тънки към дебели. Така можем да приемем, че пластинките практически не са десорбирали между края на облъчването и измерването и да проследим ефективността като функция на десорбцията. Тъй като при този експеримент не бяха проведени паралелни измервания на активността в пластинката, то тя беше пресметната с помощта на кода, описан в секция IV.2.4. Сравнение между експериментално и числено определената ефективност на УМФ-1500 при измерване на ^{85}Kr за режим на сорбция е представена на фигура IV.29. Въпреки малките разлики в началните часове на сорбция, отново се наблюдава добро съответствие между числено и експериментално определените ефективности

От наблюдаваното и за двата РБГ добро съответствие между Монте Карло и експериментално определени ефективности, можем да заключим, че предложения подход може да бъде прилаган успешно за определяне на ефективността при измерване на бета-РБГ. Освен това, при експеримента с ^{85}Kr се наблюдава, че след определено време на сорбция (около 72h) ефективността остава постоянна с времето на сорбция. От друга страна, при измерване на ^{222}Rn ефективността за регистриране на бета-частици за 0.25mm пластинки не зависи от времето на десорбция, а за 0.70mm бавно се изменя, като това изменение е около 10% за 300h десорбция. Постоянната ефективност за поликарбонати с фиксирана дебелина позволява измервания без необходимост от определяне на ефективността за конкретните условия, което способства широкото прилагане на метода.

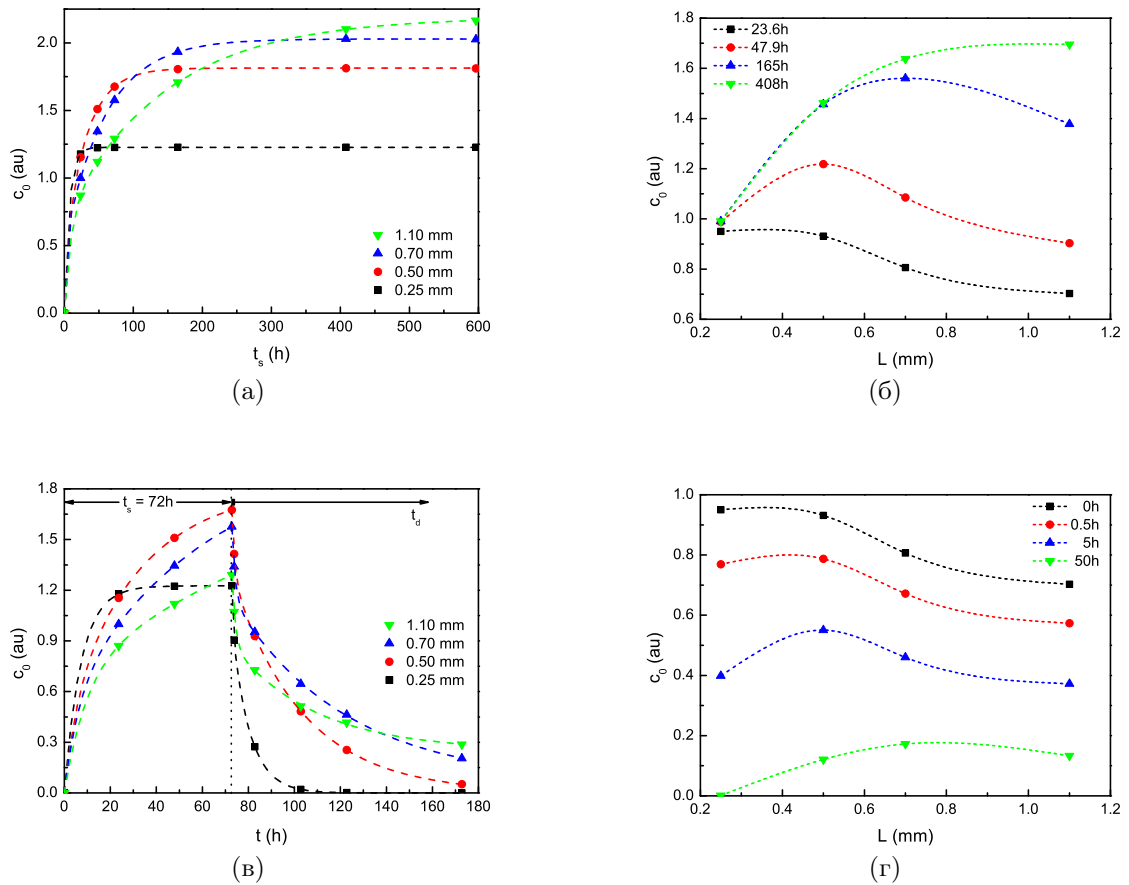


Фигура IV.29: Сравнение между експериментално и Монте Карло получените ефективности на УМФ-1500 при измерване на ^{85}Kr за пластинки с дебелина 0.25mm, 0.50mm и 0.70mm. Ефективностите са получени при режим на сорбция. Със символи са представени експерименталните резултати, а с непрекъснатата линия числено получената ефективност. Неопределеностите на експерименталните точки са на ниво 1σ .

IV.3.4 Оптимизиране при измерване на бета-радиоактивни благородни газове

Валидирането на предложеният подход позволява числено оптимизиране при измерване на бета-РБГ. На фигура IV.30 е представен пример за такова оптимизиране при измерване на концентрациите на ^{85}Kr . На фигурата са представени зависимости на скоростта на броене от времената на сорбция и десорбция и от дебелината на пластинките. От фигури IV.30(а) и IV.30(б) се вижда, че изборът на пластинка с подходяща дебелина зависи от времето за което ще бъде облъчвана пластинката (времето на сорбция). Също така, при дебелина на пластинката над 0.7mm се наблюдава бавно нарастване на сигнал с увеличаване на дебелината на пластинката. Това се дължи на факта, че дебелината се доближава до пробег на бета-частиците в поликарбоната. Следователно, може да се определи максимална дебелина на пластинките, подходящи за измерване на ^{85}Kr . На фигури IV.30(в) и IV.30(г) е представена зависимостта в режим на десорбция. Въпреки че при малки времена на сорбция по-тънките пластинки са по-подходящи, то ако измерването не може да бъде проведено кратко след края на облъчването, отново по-дебелите пластинки стават по-подходящи. Освен това в този случай не може да се сложи горна граница на дебелината на пластинките, т.к. скоростта на десорбция при по-дебелите пластинки е по-бавна и те успяват да задържат по-дълго по-голяма активност ^{85}Kr .

Въпреки че по-дебелите пластинки задържат РБГ по-дълго, в някои случаи измерването не може да бъде проведено достатъчно скоро след края на облъчването. В такива случаи активността на РБГ в поликарбоната може да намалее, дотолкова че не може да бъде измерена. Затова беше проведен пилотен експеримент, целящ изследване на възможността за забавяне на десорбцията на РБГ от поликарбоната чрез замразяване в течен азот. В този експеримент две 0.50mm и две 0.70mm правоъгълни пластинки



Фигура IV.30: Числено определена скорост на броене на УМФ-1500 при измерване на ^{85}Kr . (а) Скорост на броене като функция на времето на сорбция за четири дебелени поликарбонати. (б) Скорост на броене като функция на дебелината на пластинките за четири времена на сорбция. (в) Скорост на броене като функция на времето на десорбция (след 72h сорбция) за четири дебелени поликарбонати. (г) Скорост на броене като функция на дебелината на пластинките за четири времена на десорбция (след 72h сорбция). Със символи са представени пресметнатите стойности, а прекъснатите линии са за по-добра визуализация.

(3.5×4.5)cm бяха облъчени с ^{222}Rn в същото облъчване, описано по-горе в секция IV.3.3. Веднага след края на облъчването пластинките бяха потопени в течен азот. Петдесет часа след края на облъчването по една пластинка от двете дебелени бяха извадени и измерени на установката за ниски бета активности. Другите две пластинки бяха извадени и измерени 176h след замразяването. Получените скорости на броене бяха върнати към момента на замразяването като беше прието че намаляването на активността се дължи само на радиоактивното разпадане на ^{222}Rn . Резултатите от експеримента са представени в таблица IV.8. Както се вижда, има много добро съответствие между коригираните за разпадане скорости на броене и за двете двойки пластинки. От това можем да заключим че замразяването в течен азот напълно спира десорбцията на ^{222}Rn от пластинките. Може да се очаква, че при температура на течния азот (77.4K) процесът на десорбция може да бъде спрял или поне силно забавен и за други благородни газове (Ar, Kr, Xe и Rn) т.к. те са твърди вещества¹⁹ при тази температура. Това позволява измерване на РБГ значително след края на облъчването, ограничено единствено от периода на полуразпадане на съответния РБГ. Освен това, този ефект може да бъде подходящ при разделяне на различни РБГ, в случаи когато са абсорбирани повече от един бета-РБГ: намаляването на сигнала от замразения поликарбонат ще се дължи само радиоактивно разпадане на абсорбираните РБГ (ако замразяването спира напълно десорбцията). Тогава, ако времевата зависимост на сигнала се деконволюира с експоненти с константи на разпадане на потенциално абсорбираните РБГ, тогава техните активности могат да бъдат оценени. Тази възможност може да намери приложение при измерване на РБГ в близост до горивните елементи в АЕЦ, където по съотношението на изотопите на РБГ се съди за състоянието на горивните елементи.

¹⁹ Температурите на топене на тези благородни газове са: Ar (84K), Kr (117K), Xe (161K), Rn (202K) [130].

Таблица IV.8: Чиста скорост на броене за двете двойки пластинки, облъчени с ^{222}Rn за 48h, след което замразени в течен азот. По една пластика от всяка двойка беше замразена за 50h, а другите за 176h. Чистите скорости на броене са коригирани за разпадане на ^{222}Rn за съответните времена, за които пластинките са били замразени. Неопределеностите са дадени на ниво 1σ .

Дебелина (mm)	Продължителност		Коригирана за разпадане	
	на замразяването (h)	Чиста скорост на броене (cpm)	Чиста скорост на броене	(cpm)
0.50	50	150.5 ± 4.6		218.5 ± 6.4
0.50	176	59.1 ± 1.6		223.0 ± 5.6
0.70	50	152 ± 16		220 ± 24
0.70	176	57.2 ± 1.5		215.2 ± 5.3

Глава V

Заклучение

Представената в настоящата дисертация работа е посветена на измерванията на радиоактивни благородни газове (РБГ). Работата може да се раздели на две основни направления:

1. Развитие на метода на дифузионните камери за кумулативни измервания на ^{222}Rn ;
2. Разработване и изследване на наскоро предложения, поликарбонатен метод за измерване на РБГ в различни среди.

В увода на дисертацията е отбелязана необходимостта от кумулативни измервания на ^{222}Rn – той е естествен РБГ, идентифициран като първи по тежест причинител на белодробен рак, след тютюнопушенето. Поради големите вариации в концентрациите му, представителни за оценка на риска са продължителните, кумулативни измервания в обитаемите помещения (облъчването на човек от ^{222}Rn се дължи основно на облъчването в жилища и на работното място). В глава II са разгледани най-популярните методи за измерване на ^{222}Rn , като са представени предимствата и недостатъците им. Основно внимание е обърнато на методите, използващи твърдотелни детектори на следи и по-конкретно методът на дифузионните камери – това е най-широко използвания метод за кумулативни измервания. Сравнението му с останалите методи, определят метода на дифузионните камери като най-подходящ за такива измервания. Разгледани са основните етапи при прилагането на този метод.

Глава III представя работата, посветена на развитието на метода на дифузионните камери, извършена в лаборатория ”Дозиметрия и лъчезащита” с участието на дисертанта. След като в продължение на десетилетие следите в SSNTD на дифузионните камери се броят визуално, е предложен и е разработен метод за автоматично броене [44]. Методът се основава на сканиране на химически ецваните детектори Kodak-Pathe LR-115/II с помощта на компютърен скенер, запазване на изображението и преброяване на следите със специално разработен алгоритъм за броене. Автоматичното броене е сравнено

с визуалното. Въпреки намаляването на ефективността на броене ($\sim 40\%$), автоматичното броене ускорява процеса на броене, прави го независим от оператора и позволява броене на следите от по-голяма площ (което позволява компенсиране на по-ниската ефективност на броене). Демонстрирана е и приложимостта на метода за броене и при други SSNTD [44].

Предложена е процедура за калибриране на дифузионни камери [103]. Процедурата е приложена при калибриране на традиционно използваните в лабораторията пластмасови дифузионни камери, както и за нов тип камери – метални, имащи няколко важни предимства пред пластмасовите. При броене на следите е използвано визуално броене и автоматично броене с два алгоритъма, разработени във Физически факултет на Софийски университет. Резултатите от двата алгоритъма се съгласуват добре, което позволява използването и на двата алгоритъма. Калибровъчните коефициенти за двата типа камери и двата типа броене са в рамките на $1.1-2.4\text{cm}^{-2}\text{Bq}^{-1}\text{h}^{-1}\text{m}^3$, с неопределеност по-добра от 10% . При калибрирането са изследвани и метални камери с различен брой и размери на отворите [103]. Резултатите показват, че броят и размерите на отворите не влияят на процеса на дифузия на радон в камерата. Това позволява по-лесното изработване на метални камери, без спазване на специална конструкция. В следствие на извършената дотук работа е налице завършена процедура (вкл. калибриране), позволяваща прецизни кумулативни измервания на радон с два типа дифузионни камери.

В глава II е представено разнообразието от научни области, в които измерванията на РБГ представляват интерес. Това са области като радиоокология, ядрена енергетика, ядрена безопасност, науки за Земята (геология, геофизика, хидрология). Разгледани са методите, прилагани в тези науки, като някои от тези методи са безалтернативни. Паралелно с тях е разгледан и предложеният наскоро поликарбонатен метод, основаващ се на високата абсорбционна способност на някои поликарбонати за благородни газове. В много от случаите е показано, че този метод има потенциал да бъде използван като допълващ или алтернативен на използваните до момента. В някои случаи дори се оказва, че методът е по-подходящ от досега използваните. До момента обаче, методът е прилаган само на пилотно ниво. Затова са очертани насоките, в които трябва да се работи, за да се разкрие пълният му потенциал.

В глава IV е показана приложимостта на метода за измерване на ^{85}Kr във вода [93]. Оценена е минималната детектируема концентрация на ^{85}Kr за конкретните условия на измерване [93]. Фактът, че методът е приложим за ^{85}Kr и ^{222}Rn във вода, дава основание да считаме че ще е приложим и за други РБГ разтворени във вода. Представена е работата посветена на разработването на метода за измерване на РБГ чрез абсорбция в

поликарбонати и регистриране на бета- или гама-лъчението от абсорбирания РБГ. Разработен е и експериментално е валидиран теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати [73]. Единствените свободни параметри в модела са коефициентът на разпределение и дължината на дифузия (коефициента на дифузия) на РБГ в поликарбоната, като и двата параметъра са физични величини, подлежащи на точно определяне. Теоретичният модел позволява определяне на абсорбираната активност в поликарбонат с определена форма и разпределението на тази активност като функция на времената на сорбция и десорбция и размерите на поликарбоната. Аналитичните изрази за тези величини представляват суми от членовете на безкрайни редове. Затова е разработен компютърен код, който позволява прецизното им пресмятане. Кодът е валидиран чрез сравнение с експериментални данни [119]. С помощта на кода е изследвана сходимостта на сумите като функция на сумационния индекс, до който се ограничава сумирането на безкрайните редове. Изведен е аналитичен израз за оценка на точността на пресмятанията като функция на сумационния индекс [119]. Въз основа на тези изследвания са предложени възможности за подобрения в кода, водещи до подобряване на точността. Показана е приложимостта на кода при планиране и оптимизиране на експерименти по измерване на РБГ [93, 97, 121]. С помощта на кода е оценена минималната детектируема концентрация на ^{133}Xe във въздух, при измерване чрез абсорбция в поликарбонат и последващо гама-спектрометрично измерване [97]. При конкретните условия оцененото MDAC е 100Bq/m^3 .

Въз основа на теоретичния модел са разработени методи за определяне на коефициентът на разпределение и дължината на дифузия на РБГ в полимерни материали [73, 113, 114]. Методите са приложени за определяне на дължините на дифузия на ^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn в поликарбонати, за определяне на коефициентът на разпределение на ^{85}Kr , ^{133}Xe и ^{222}Rn между въздух и поликарбонат и за определяне на коефициентът на разпределение на ^{85}Kr и ^{222}Rn между вода и поликарбонат. Приложимостта на методите е потвърдена и от успешното ни участие в международно сравнение по определяне на ефективен коефициент на дифузия на ^{222}Rn в различни полимерни материали [118]. Участието ни се отличи с добро съответствие между нашите резултати и тези на повечето участници. Резултатите ни съвпадат и с изнесените (впоследствие) литературни данни [118].

В секция IV.3 е представен проблемът при определяне на ефективността при измерване на бета-РБГ чрез абсорбция в поликарбонати и регистриране на β -частиците, излъчени от поликарбоната при разпадането на съответния бета-РБГ. Предложен е числен подход за оценка на тази ефективност [121], който се реализира в три стъпки: 1. Пресмятане на разпределението на РБГ в поликарбоната; 2. Точно описание на геометрията на измерване и на детекторната система с помощта на пакета PENGEOM от кода PENELOPE;

3. Използване на пресметнатото разпределение, литературни данни за енергийния спектър на β -частиците на съответния РБГ и описанието на геометрията при детайлна Монте Карло симулация с PENELOPE за определяне на ефективността. Важно е да се отбележи, че при този подход за определяне на ефективността, няма свободни параметри. Подходът е валидиран като е сравнен с експериментални резултати от измервания на ^{85}Kr и ^{222}Rn чрез абсорбция в поликарбонатни пластинки и измерване с установка за общо бета-броене с детектор ГМ-брояч с тънък входящ прозорец [121]. За случая на радон са наблюдавани систематични разлики, обяснени с чувствителността на детектора към α -частиците на КПП на ^{222}Rn . Предложен е и е валидиран подход за оценка на приноса на α -частиците към сигнала от детектора [122]. След отчитане на този принос, се наблюдава много добро съвпадение на числената оценка с експерименталните резултати [121]. Предложеният подход позволява оценка на ефективността при измерване на бета-РБГ при произволни условия на облъчване и измерване. Установено е, че след известно време на сорбция за ^{85}Kr ефективността става постоянна, а при десорбция за ^{222}Rn в широк интервал от времена на десорбция ефективността се изменя слабо [121]. Съществуването на такива условия на постоянна във времето ефективност би позволило измервания без необходимост от калибриране за конкретните условия.

Предложен е подход, позволяващ забавяне или дори спиране на процеса на десорбция на РБГ от поликарбоната [121]. Подходът се основава на замразяване на поликарбоната след края на облъчването. По този начин се намалява загубата на активност от поликарбоната, което е важно в случаите, когато измерването не може да започне веднага след облъчването. Демонстрирано е успешното прилагане на подхода в експеримент с ^{222}Rn .

Приноси

Приноси, които дисертантът защитава в представената дисертация:

1. Валидиран е и е изследван новопредложения алгоритъм за автоматично броене на химически ецвани следи в твърдотелни детектори на следи Kodak Pathe LR115/II сканирани с компютърен скенер. Показано е, че алгоритъмът е приложим и за химически ецвани следи и в друг тип SSNTD – Makrofol.
2. Проведено е калибриране на два типа дифузионни камери (пластмасови и метални) със SSNTD при визуално и автоматично броене на следите. Калибровъчните коефициенти са определени с неопределеност по-добра от 10%.
3. Показано е, че методът за измерване на РБГ чрез абсорбция в поликарбонати, е приложим за измервания на ^{85}Kr във води.
4. Експериментално е валидиран новопредложеният теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати. Моделът позволява пресмятането на абсорбираната активност и разпределението ѝ в поликарбонат.
5. На базата на теоретичния модел е разработен компютърен код, позволяващ пресмятания с контролирана точност. Изведен е аналитичен израз за грешката при пресмятанията. С помощта на кода е оценена MDAC за ^{133}Xe във въздух при измерване чрез абсорбция в поликарбонати и гама-спектрометрия.
6. Разработен метод позволяващ определяне на коефициента на разпределение K и/или дължината на дифузия L_D (коефициента на дифузия D) на РБГ в поликарбонати. С него е определен ефективния коефициент на дифузия ($p = KD$) на ^{222}Rn в различни полимерни материали, при успешното ни участие в международно сравнение.
7. Предложен е и е валидиран подход за числено определяне на ефективността при измерване на РБГ чрез абсорбция в поликарбонати и общо бета-броене. Предложен е и е валидиран метод за оценка на приноса на α -частици към сигнала от общо бета-броене, в случай на смесен източник – какъвто е случая с ^{222}Rn .
8. Изследвана е възможността за забавяне и спиране на десорбцията на РБГ от поликарбоната чрез съхраняване при ниски температури, с оглед на възможността да се прожеждат измервания значително след края на облъчването.

Публикации във връзка с дисертацията

Публикации в списания

1. L. Tsankov, D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, I. Dimitrova. Automatic Counting of Chemically Etched Tracks by Means of a Computer Scanner. *Rad. Meas.*, 39:557-559, 2005. (библ. изт. [44], секция III.1).
2. S. Georgiev, D. Pressyanov, K. Mitev, I. Dimitrova. Calibration of Diffusion Chambers for Measuring ^{222}Rn in Air. *BgNS Trans.*, 12(1):3-6, 2008. (библ. изт. [103], секция III.2).
3. K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, T. Boshkova, V. Zhivkova. Measurement of Krypton-85 in Water by Absorption in Polycarbonates. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 603:491-494, 2009. (библ. изт. [93], секции IV.1, IV.2.4.3).
4. D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, I. Dimitrova. Sorption and Desorption of Radioactive Noble Gases in Polycarbonates. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 598:620-627, 2009. (библ. изт. [73], секции IV.2.1, IV.2.2, IV.2.3).
5. D. Pressyanov, K. Mitev, I. Dimitrova, S. Georgiev. Solubility of Krypton, Xenon and Radon in Polycarbonates. Application for Measurement of Their Radioactive Isotopes. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 629:323-328, 2010. (библ. изт. [113], секция IV.2.3).
6. D. Pressyanov, S. Georgiev, I. Dimitrova, K. Mitev, T. Boshkova. Determination of the Diffusion Coefficient and Solubility of Radon in Plastics. *Rad. Prot. Dosim.*, 145(2-3):123-126, 2011. (библ. изт. [114], секция IV.2.3).
7. S. Georgiev, K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, T. Boshkova. Numerical modelling of the activity concentration measurements of beta-radioactive noble gases by absorption in polycarbonates and external beta-counting. *Rad. Meas.* accepted (библ. изт. [121], секция IV.3).

Доклади на конференции

1. С. Георгиев, И. Димитрова, Т. Бошкова, К. Митев, Д. Пресиянов. Определяне на ефективността за регистрация на алфа-частици на установка за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500. В *Сборник с доклади от XX НАЦИОНАЛЕН НАУЧЕН СИМПОЗИУМ с международно участие МЕТРОЛОГИЯ И МЕТРОЛОГИЧНО ОСИГУРЯВАНЕ*, 283-289, Созопол, България, Септември 2010. (библ. изт. [122], секция IV.3).
2. С. Георгиев, К. Митев, Д. Пресиянов, Г. Герганов, И. Димитрова. Компютърен код за прецизно пресмятане на активността и дълбочинното разпределение на радиоактивни благородни газове абсорбирани в поликарбонати. В *Сборник с доклади от XXI НАЦИОНАЛЕН НАУЧЕН СИМПОЗИУМ с международно участие МЕТРОЛОГИЯ И МЕТРОЛО-*

ГИЧНО ОСИГУРЯВАНЕ, 278-283, Созопол, България, Септември 2011. (библ. изт. [119], секция IV.2.4.2).

3. S. Georgiev, K. Mitev, D. Pressyanov, T. Boshkova, I. Dimitrova. Measurement of ^{133}Xe in Air by Absorption in Polycarbonates – Detection Limits and Potential Applications. *IEEE NSS/MIC Conference record*: NP1.M-85, Valencia, Spain, 23-29 October 2011 (библ. изт. [97], секция IV.2.4.4).

Приложения

Приложение А

Методи за ретроспективни измервания на радон¹

Методите за ретроспективни измервания имат за цел да установят концентрациите на радон назад във времето. Тъй като латентният период за развитие на белодробния рак е между 5 и няколко десетки години, то вероятността за развитие на белодробен рак в момента се дължи на облъчване назад във времето. В този смисъл, методите за ретроспективни измервания имат за цел установяване на връзката между облъчването от радон и вероятността за развитие на белодробен рак. За определяне на концентрациите на радон назад във времето, на които даден човек е бил изложен, се използват т. нар. обекти свидетели. Това са предмети, които човек носи постоянно със себе си (напр. очила) или такива, които стоят в жилището му, но той взема при преместването в ново жилище (рамки за снимки, мебели, CD/DVD). Четирите най-популярни метода за измерване на радон са: метод на имплантираното в стъкло ^{210}Pb , метод на обемните уловки, метод на лещите за очила и CD/DVD метод. Това, което е характерно и за четирите метода, е че с тях се определя интегрираната за времето на облъчване обемна активност на ^{222}Rn . За да се определи средната за времето на облъчване, обемна активност, е необходимо да се знае времето за облъчване. Това не винаги може да бъде точно определено, поради което времето за облъчване е един от източниците на неопределеност на тези методи.

¹Тези методи не са обект на настоящата дисертация. Направеният тук кратък преглед има за цел да допълни представата за методите за кумулативни измервания на радон. Методите за ретроспективни измервания са подробно разгледани в [27].

А.1 Метод на имплантираното в стъкло ^{210}Pb

Този метод се основава на откатното имплантиране на ^{210}Pb (дългоживеещ продукт на разпадане на ^{222}Rn , виж Приложение Б) в стъклото на рамки за снимки. Краткоживеещите продукти на разпадане на ^{222}Rn , намиращи се в помещението, се отлагат по повърхността на стъклото на снимката. При разпадането си, някои полепналите КПП (^{218}Po и ^{214}Po) излъчват α -частици. При това, откатната енергия на ядрото се оказва достатъчна за да го имплантира в повърхността на стъклото. След разпадане на КПП, на повърхността на стъклото остава имплантиран дългоживеещия ^{210}Pb ($T_{1/2}=22.2\text{y}$). Дъщерен продукт на ^{210}Pb е ^{210}Po ($T_{1/2}=138\text{d}$), които може да се приеме че са в равновесие, т.к. при измерванията се използват предмети на поне 5-10 години. Повърхностната активност на $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ се определя, като върху повърхността на стъклото се поставя SSNTD. За да се свърже активността на $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ с тази на ^{222}Rn по време на облъчването, се използват модели, описващи процеса на отлагане на КПП върху стъклото. Силното влияние на фактори като концентрация на аерозоли, дебит на въздуха през стаята, отношение площ/обем на стаята, скорост на отлагане на свързаната и несвързаната фракция КПП, водят до неопределеност на метода от порядъка на 60%, като в някои случаи неопределеността може да надхвърли порядък [27]. Въпреки това, до този момент това е най-широко използвания метод, поради ниската цена на измерванията и лесната приложимост на метода.

А.2 Метод на обемните уловки

Този метод се основава на натрупването на $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ в порите на различни материали, използвани при направата на мебели. Такива материали са напр. вълната, дунапрена и др., използвани при направата на меки мебели. Тъй като ^{222}Rn е инертен газ, той свободно дифундира в обема на тези материали. След разпадането му, продуктите на разпадане се оказват "уловени" в порите на материала. Така в обемните уловки се натрупва ^{210}Pb , но за разлика от метода на имплантираното олово, активността на ^{210}Pb в уловките е директно свързана с активността на ^{222}Rn в помещението. Активността в материала се определя като се вземе проба и при лабораторни условия се определи активността на ^{210}Po . Източниците на неопределеност на метода са: различна абсорбционна способност на материалите за радон, оценката на обема на взетите проби, невъзможността да се определи дали материала е рециклиран [27]. Въпреки това, методът позволява измервания с неопределеност 30%. Причината да не е масово използване е деструктивния характер на измерванията и сравнително високата цена на потенциално повредените мебели.

А.3 Метод на лещите за очила

При този метод се използва факта че някои от съвременните лещи за очила са направени от CR-39 и свойството на този материал на SSNTD. При разпадането си ^{222}Rn и КПП (^{218}Po и ^{214}Po) излъчват α -частици, които формират следи в CR-39. Плътността на следите е пропорционална на интегрираната по времето обемна активност на ^{222}Rn , като силно се влияе от равновесието между ^{222}Rn и КПП. За да се елиминира това влияние, за определяне на плътността на следите се използва повърхността на лещата откъм лицето. При това се разчита че във въздуха между лицето и лещата, по дифузионен път достига само ^{222}Rn и там ^{222}Rn е в равновесие с КПП. Тъй като КПП се отлагат по повърхности (лицето и очилата) плътността на следите също зависи от навиците на човека за носенето и почистването на очилата, разстоянието между лицето и очилата. Това е основание, авторите на метода да го считат по-скоро за спомагателен метод (виж [27] и цитираната там литература).

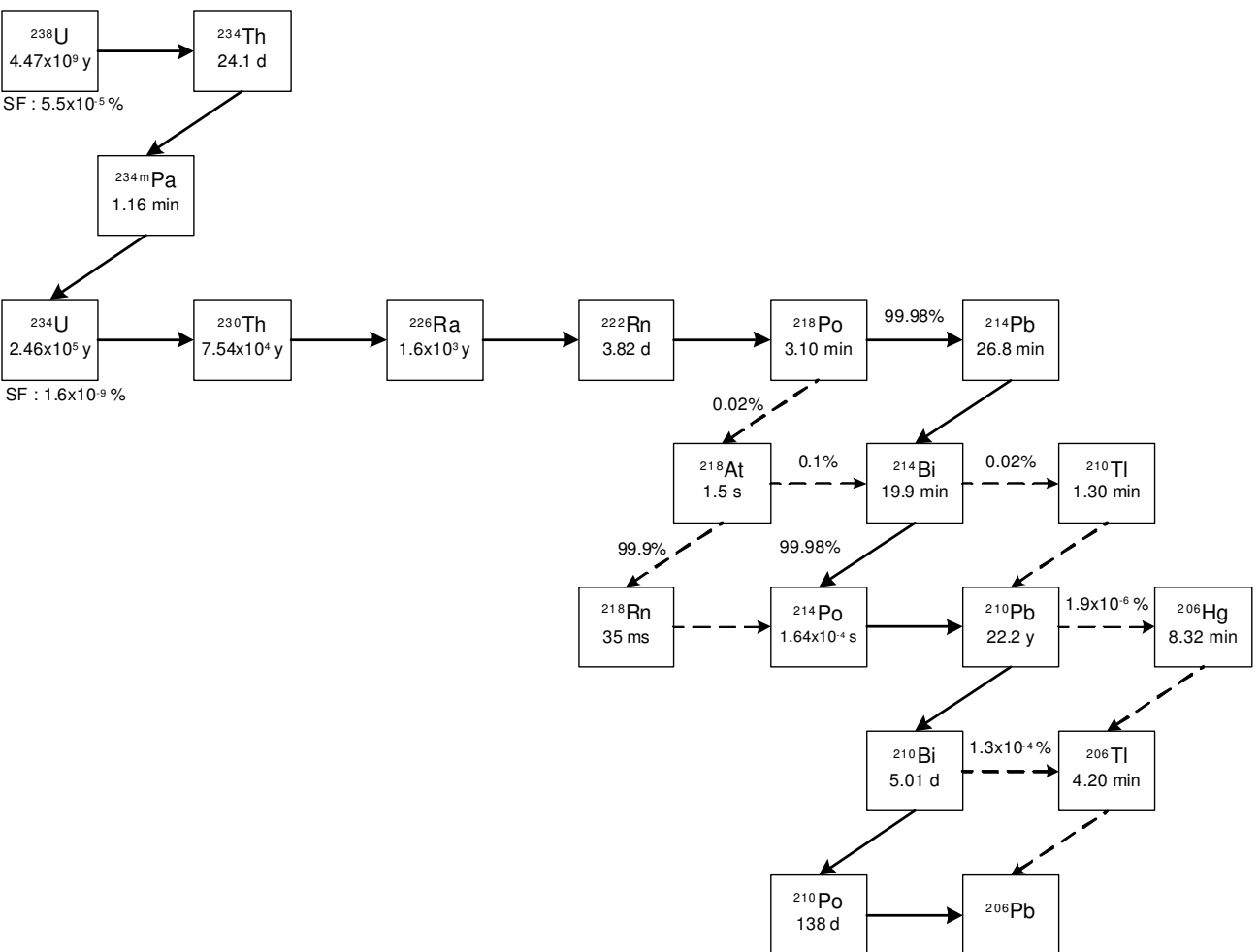
А.4 CD/DVD метод²

Този метод се основава на способността на поликарбонатите синтезирани от бисфенол-А да абсорбират РБГ, свойствата на тези поликарбонати на SSNTD и факта че широко използваните CD/DVD се произвеждат от такъв поликарбонат. Докато CD/DVD се намира в дадено помещение, поликарбоната абсорбира ^{222}Rn . Абсорбираният в диска ^{222}Rn и КПП се разпадат и формират следи в поликарбоната. Плътността на следите е пропорционална на интегрираната по времето на облъчване активност на ^{222}Rn в помещението. Факторите, които влияят на измерването са температурата и малки разлики в абсорбционната способност на различни CD/DVD. Влиянието на тези фактори могат да бъдат отчетени а posteriori. Типичната неопределеност на измерванията по този метод е 20% [27]. Този метод е сравнително нов, но пилотното му прилагане в радонови изследвания показват потенциал да бъде използван при масови радонови изследвания [27].

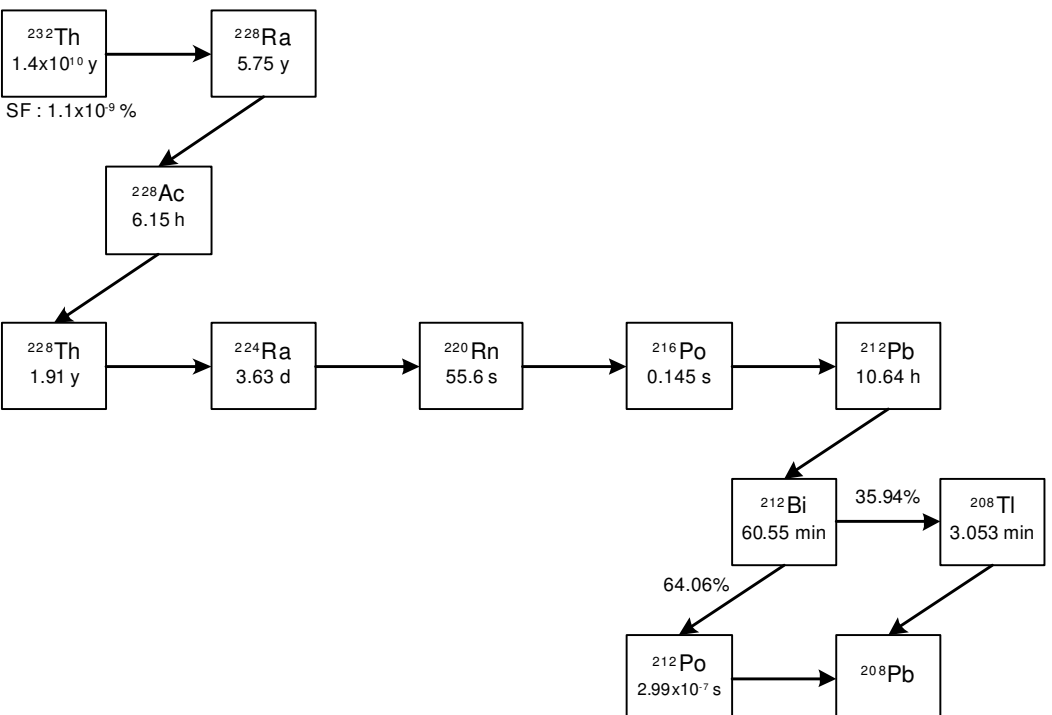
²Методът е по-подробно представен в секция II.1.6, а в [27] е представено разработването и развитието му.

Приложение Б

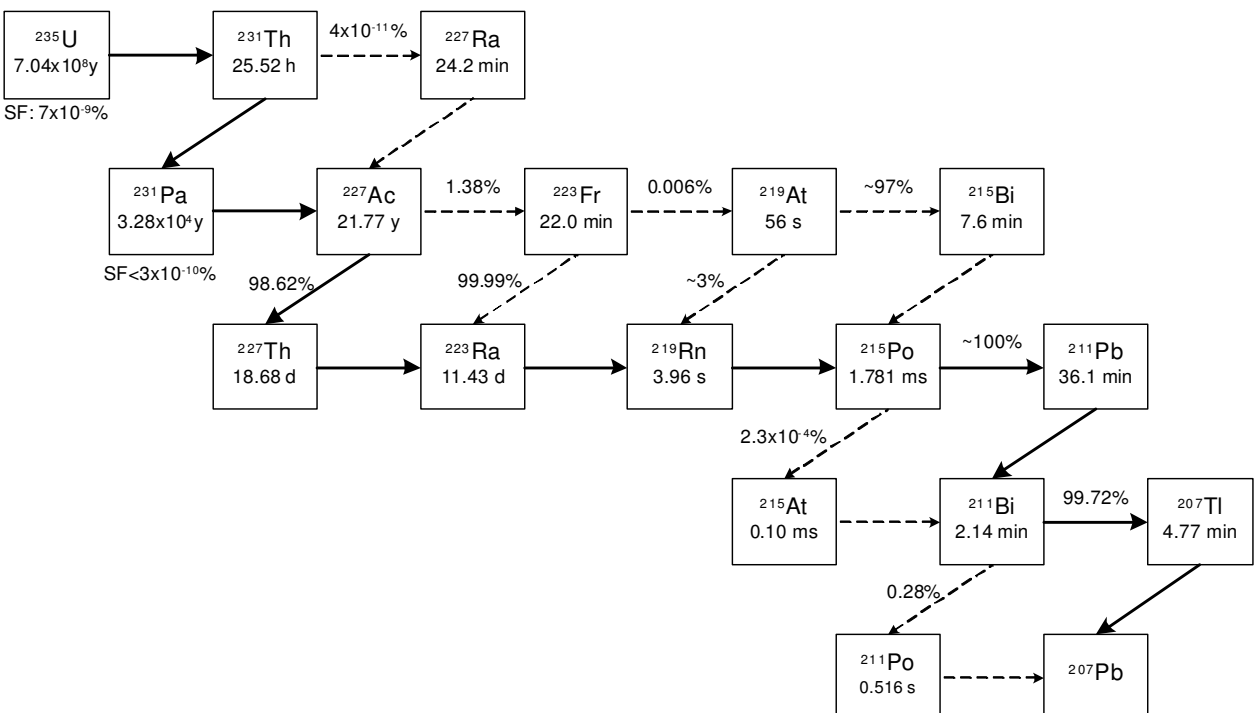
Схеми на разпадане на естествени
радиоактивни редове



Фигура В.1: Схема на разпадане на реда на ^{238}U (Уран-радионо семейство). Използваните данни за нуклидите (период на полуразпадане, вероятност за α -, β -разпадане, спонтанно делене (SF)) са от интернет страницата на Брукхаузен Национал Лаборатори [1].



Фигура В.2: Схема на разпадане на реда на ^{232}Th (ториево семейство). Използваните данни за нуклидите (период на полуразпадане, вероятност за α -, β -разпадане, спонтанно делене (SF)) са от интернет страница на Brookhaven National Laboratory [1].



Фигура В.3: Схема на разпадане на реда на ^{235}U (уран-актиниево семейство). Използваните данни за нуклидите (период на полуразпадане, вероятност за α -, β -разпадане, спонтанно делене (SF)) са от интернет страницата на Брукхаузен National Laboratory [1].

Библиография

- [1] Brookhaven National Laboratory. National nuclear data center: Chart of nuclides. <http://www.nndc.bnl.gov/>.
- [2] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Sources and effects of ionizing radiation*. UN Publications, New York, NY, USA, 1993.
- [3] World Health Organization. WHO handbook on indoor radon - a public health perspective. <http://www.who.int/en/>.
- [4] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Sources and effects of ionizing radiation*. UN Publications, New York, NY, USA, 2000.
- [5] International Commission on Radiological Protection. *Protection Against Radon-222 at Home and at Work*. ICRP Publication 65. Annals of the ICRP 23 (2), 1993.
- [6] Commission of the European Communities. Commission recommendation of 21 february 1990 on the protection of the public against indoor exposure to radon (90/143/euratom).
- [7] H. Synnott and D. Fenton. *ERRICCA 2 Report: An Evaluation of Radon Reference Levels and Radon Measurement Techniques and Protocols in European Countries*. Radiological Protection Institute of Ireland, March 2005.
- [8] J. M. Zielinski and Z. Carr. *Meeting Report of The 1st Meeting of National Experts for WHO's International Radon Project – 17-18 Jan 2005*. Geneva, Switzerland.
- [9] S. Przyborowski and W. Rönhsch. Putting the ICRP recommendations on radon into national practice: Possibilities and problems. *Env. Internat.*, 22:S1093–S1097, 1996.
- [10] Министерски съвет. Наредба за основните норми за радиационна защита. *Държавен вестник*, 73, 2004.

- [11] Environmental Protection Agency. *National Primary Drinking Water Regulations*. Federal Register, Washington, DC, USA, 2000.
- [12] Commission of the European Communities. Commission recommendation of 20 december 2001 on the protection of the public against exposure to radon in drinking water supplies (notified under document number c(2001) 4580). *Official Journal of the European Union*, L 344/85, 2001.
- [13] I. Dimitrova, K. Mitev, D. Pressyanov, S. Georgiev, and T. Boshkova. Measurement of ^{222}Rn and ^{226}Ra by absorption of radon in polycarbonates and etching alpha-tracks. *Rad. Meas.*, 46:119–126, 2011.
- [14] Министерски съвет. Наредба No7 за показатели и норми за определяне качеството на течащите повърхностни води. *Държавен вестник*, 96, 1986.
- [15] D. Pressyanov, A. Van Deynse, J. Buysse, A. Poffijn, and G. Meesen. Polycarbonates: A new retrospective radon monitor. In *Proceedings of IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe.*, pages 716–722, Cedex, France, 1999. International Radiation Protection Association.
- [16] D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, E. Hristova, and K. Mitev. Measurement of radon-222 in water by absorption in Makrofol. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 574:202–204, 2007.
- [17] D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and K. Mitev. Measurements of ^{222}Rn by absorption in polycarbonates - research and practice. In *Proceedings of the American Association fo Radon Scientists and Technologists 2008 International Symposium.*, Las Vegas, NV, USA, September 14-17 2008. AARST. (Available on: <http://www.aarst.org/proceedings/2008/>).
- [18] M. Heim, A. Fritsch, A. Schuh, A. Shore, and M. Thoennessen. Discovery of the krypton isotopes. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 96:333–340, 2010.
- [19] Y. Dubasov and N. Okunev. Krypton and xenon radionuclides monitoring in the northwest region of russia. *Pure Appl. Geophys.*, 167:487–498, 2010.
- [20] International Atomic Energy Agency. *Review of Fuel Failures in Water Cooled Reactors*. IAEA NUCLEAR ENERGY SERIES No. NF-T-2.1. IAEA, Vienna, Austria, 2010.

- [21] K. Winger, J. Feichter, M. B. Kalinowski, H. Sartorius, and C. Schlosser. A new compilation of the atmospheric ^{85}Kr inventories from 1945 to 2000 and its evaluation in a global transport model. *J. Env. Rad.*, 80:183–215, 2005.
- [22] Paul R. J. Saey. The influence of radiopharmaceutical isotope production on the global radioxenon background. *J. Env. Rad.*, 100:396–406, 2009.
- [23] Comprehensive Nuclear-Test-Ban-Treaty Organization. 13-April-2011. Fukushima-related measurements by CTBTO. <http://www.ctbto.org/press-centre/highlights/2011>.
- [24] T. W. Bowyer, S. R. Biegalski, M. Cooper, P. W. Eslinger, D. Haas, J. C. Hayes, H. S. Miley, D. J. Strom, and V. Woods. Elevated radioxenon detected remotely following the Fukushima nuclear accident. *J. Env. Rad.*, 102:681–687, 2011.
- [25] L. E. Sinclair, H. C. J. Seywerd, R. Fortin, J. M. Carson, P. R. B. Saull, M. J. Coyle, R. A. Van Brabant, J. L. Buckle, S. M. Desjardins, and R. M. Hall. Aerial measurement of radioxenon concentration off the west coast of Vancouver Island following the Fukushima reactor accident. *J. Env. Rad.*, 102:1018–1023, 2011.
- [26] D. Pressyanov, K. Mitev, and V. Stefanov. Measurement of ^{85}Kr and ^{133}Xe in air by absorption in Makrofol. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 527:657–659, 2004.
- [27] И. Димитрова. Измерване на ^{222}Rn във въздушна и водна среда чрез абсорбция в поликарбонати. PhD thesis, Софийски Университет "Св. Климент Охридски", София, 2011.
- [28] R. L. Fleischer, P. B. Price, R. M. Walker, and E. L. Hubbard. Track registration in various solid-state nuclear track detectors. *Phys. Rev.*, 133(5A):A1443–A1449, 1964.
- [29] L. Tommasino, G. Zapparoli, and R. V. Griffith. Electrochemical etching – I: Mechanisms. *Nucl. Tracks*, 4:191–196, 1981.
- [30] L. Tommasino, G. Zapparoli, R. V. Griffith, and A. Mattei. Electrochemical etching – II: Methods, apparatus and results. *Nucl. Tracks*, 4:197–201, 1981.
- [31] R. L. Fleischer, P. B. Price, and R. M. Walker. Simple detectors for neutrons or heavy cosmic ray nuclei. *Rev. Sci. Instr.*, 37:525, 1966.
- [32] N. L. Lark. Spark scanning for fission fragment tracks in plastic foils. *Nucl. Instr. Meth.*, 67:137–140, 1968.

- [33] D. Nikezic and K.N. Yu. Formation and growth of tracks in nuclear track materials. *Math. Sci. Eng. R*, 46:51–123, 2004.
- [34] H. A. Khan and S. A. Durrani. Electronic counting and projection of etched tracks in solid state nuclear track detectors (SSNTD). *Nucl. Instr. Meth.*, 101:583–587, 1972.
- [35] H. P. Chou, R. H. Johnson, and F. M. Clikeman. An automatic fission track scanner. *Nucl. Instr. Meth.*, 185:359–371, 1981.
- [36] D. Azimi-Garakani. Intercomparison of automatic fission track counting systems. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, 225:101–103, 1984.
- [37] J. D. Steele, J. R. Bhakta, R. J. Tanner, and D. T. Bartlet. Development of a reader for track etch detectors based on a commercially available slide scanner. *Rad. Meas.*, 31:179–184, 1999.
- [38] W. G. Cross and L. Tommasino. A rapid reading technique for nuclear particle damage tracks in thin foils. *Rad. Eff. Def. Solids*, 5:85–89, 1970.
- [39] M. M. Monnin. Methods of automatic scanning of SSNTDs. *Nucl. Instr. Meth.*, 173:63–72, 1980.
- [40] J. Tripier, R. Ooppel, G. Remy, and M. Debeauvais. Fast-neutron dosimetry by means of a cellulose-nitrate detector. *Nucl. Instr. Meth.*, 125:487–489, 1975.
- [41] C. P. Bean, M. V. Doyle, and G. Entinel. Etching of submicron pores in irradiated mica. *J. Appl. Phys.*, 41:1454, 1970.
- [42] J. R. Harvey and A. R. Weeks. A neutron dosimetry system based on the chemical etch of CR-39. *Int. J. Rad. Appl. Instr., Sec. D: Nucl. Tracks Rad. Meas.*, 12(1-6):629 – 632, 1986.
- [43] P.C. Popov and D.S. Pressyanov. Track density assessment by obstructed total internal reflection of a laser beam. *Rad. Meas.*, 27:27–30, 1997.
- [44] L. Tsankov, D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, and I. Dimitrova. Automatic counting of chemically etched tracks by means of a computer scanner. *Rad. Meas.*, 39:557–559, 2005.
- [45] Z.-F. Ibrahimi and J.C.H. Miles. Performance review of a slide scanner based automated counting system for PADC radon detectors. *Rad. Meas.*, 43:S395–S400, 2008.

- [46] V. A. Nikolaev and R. Ilić. Etched track radiometers in radon measurements: A review. *Rad. Meas.*, 30:1–13, 1999.
- [47] L. Vasudevan and M. E. McLain. Atmospheric pressure effects on the calibration constant of alpha-track radon detectors. *Health Phys.*, 66(3):318–326, 1994.
- [48] D. Nikezic and D. Krstic. A study of amplifying the response of an LR115 solid state track detector by combining it with electret. *Health Phys.*, 69(6):979–986, 1995.
- [49] D. Nikezic, D. Krstic, and S. Savovic. Response of diffusion chamber with LR115 detector and electret to radon and progeny. *Rad. Meas.*, 44:783–786, 2009.
- [50] D.S. Pressyanov, M. G. Guelev, and B. G. Sharkov. Radon and radon progeny outdoors in a valley of enhanced natural radioactivity. *Atmosph. Env.*, 29(23):3433–3439, 1995.
- [51] L. Tommasino, M. C. Tommasino, and P. Viola. Radon-film-badges by solid radiators to complement track detector-based radon monitors. *Rad. Meas.*, 44:719–723, 2009.
- [52] I. Csige and S. Csegi. The radamon radon detector and an example of application. *Rad. Meas.*, 34:437–440, 2001.
- [53] G. Sciocchetti, G. Cotellessa, E. Soldano, and M. Pagliari. A new technique for measuring radon exposure at working places. *Rad. Meas.*, 36:199–203, 2003.
- [54] R. S. Neman, I. D. Schmitman, J. C. Hadler N, P. J. Iunes, S. R. Paulo, and S. Guedes. Measurement of indoor ^{222}Rn using CR-39 under a thin film geometry. *Rad. Meas.*, 34:145–148, 2001.
- [55] G. M. Sessler (Ed.). *Electrets.*, volume 33 of *Topics in Applied Physics*. Springer-Verlag, Oxford, UK, second enl. edition, 1987.
- [56] P. Kotrappa. Long term stability of electrets used in electret ion chamber. *J. Elstat.*, 66:407–409, 2008.
- [57] A. Sorimachi, H. Takahashi, and S. Tokonami. Influence of the presence of humidity, ambient aerosols and thoron on the detection responses of electret radon monitors. *Rad. Meas.*, 44:111–115, 2009.
- [58] H. Möre and L.M. Hubbard. ^{222}Rn absorption in plastic holders for alpha track detectors: A source of error. *Rad. Prot. Dosim.*, 74:85–91, 1997.

- [59] K. Mitev, Y. Madzhunkov, G. Gerganov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and D. Pressyanov. Automatic counting of electrochemically etched tracks in compact disks. application to retrospective measurements of Rn-222. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 57:300–308, 2010.
- [60] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Poffijn, G. Meesen, and A. Van Deynse. The compact disk as radon detector – a laboratory study of the method. *Health Phys.*, 84:642–651, 2003.
- [61] I. Dimitrova, D. Pressyanov, S. Georgiev, and P. Yankov. Logistic of surveys of retrospective radon concentrations by home-stored DCs/DVDs. *Rad. Prot. Dosim.*, 145(2-3):300–304, 2011.
- [62] Surinder Singh, Dinesh Kumar Sharma, Sunil Dhar, and Surjit Singh Randhawa. Geological significance of soil gas radon: A case study of Nurpur area, district Kangra, Himachal Pradesh, India. *Rad. Meas.*, 13(4):482 – 485, 2006.
- [63] C. Cigolini, M. Laiolo, and D. Coppola. Earthquake–volcano interactions detected from radon degassing at Stromboli (Italy). *Earth Planet. Sci. Lett.*, 257:511–525, 2007.
- [64] D. V. Reddy, B. S. Sukhija, P. Nagabhushanam, G. K. Reddy, Devender Kumar, and P. Lachassange. Soil gas radon emanometry: A tool for delineation of fractures for groundwater in granitic terrains. *J. Hydrol.*, 329:186–195, 2006.
- [65] M. Schubert, W. Buerkin, P. Pena, A. E. Lopez, and M. Balcázar. On-site determination of the radon concentration in water samples: Methodical background and results from laboratory studies and a field-scale test. *Rad. Meas.*, 41:492–497, 2006.
- [66] M. Schubert, A. Schmidt, A. Paschke, A. E. Lopez, and M. Balcázar. In situ determination of radon in surface water bodies by means of a hydrophobic membrane tubing. *Rad. Meas.*, 43:111–120, 2008.
- [67] A. Schmidt, M. Schlueter, M. Melles, and M. Schubert. Continuous and discrete on-site detection of radon-222 in ground- and surface waters by means of an extraction module. *Appl. Rad. Isot.*, 66:1939–1944, 2008.
- [68] C. Papastefanou. An overview of instrumentation for measuring radon in soil gas and groundwaters. *J. Env. Rad.*, 63:271–283, 2002.
- [69] F. Ruckerbauer and R. Winkler. Radon concentration in soil gas: A comparison of methods. *Appl. Rad. Isot.*, 55:273–280, 2001.
- [70] J. Kemski, A. Siehl, R. Stegemann, and M. Valdivia-Manchego. Mapping the geogenic radon potential in Germany. *Sci. Tot. Env.*, 272:217–230, 2001.

- [71] Karel Turek, Metody Gelev, and Iancho Dimov. Comparative measurements of soil gas radon concentration using thermoluminescent and track detectors. *Rad. Meas.*, 38:843–846, 2004.
- [72] C. Cigolini, P. Poggi, M. Ripepe, M. Laiolo, C. Ciamberlini, D. Delle Donne, G. Olivieri, D. Coppola, G. Lacanna, E. Marchetti, D. Piscopo, and R. Genco. Radon surveys and real-time monitoring at Stromboli volcano: Influence of soil temperature, atmospheric pressure and tidal forces on ^{222}Rn degassing. *J. Volcanol. Geoth. Res.*, 184(3-4):381 – 388, 2009.
- [73] D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, and I. Dimitrova. Sorption and desorption of radioactive noble gases in polycarbonates. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 598:620–627, 2009.
- [74] J. Duffus. Glossary for chemists of terms used in toxicology (IUPAC recommendations 1993). *Pure Appl. Chem.*, 65(9):2003–2122, 1993.
- [75] Darwish Al-Azmi and N. Karunakara. Determination of radon concentration in soil gas by gamma-ray spectrometry of olive oil. *Rad. Meas.*, 42:486–490, 2007.
- [76] Jong-Mi Lee and Guebuem Kim. A simple and rapid method for analyzing radon in coastal and ground waters using a radon-in-air monitor. *J. Env. Rad.*, 89:219–228, 2006.
- [77] S.A. Talha, R.J. de Meijer, R. Lindsay, R.T. Newman, P.P. Maleka, and I.N. Hlatshwayo. In-field radon measurement in water: A novel approach. *J. Env. Rad.*, 101(12):1024 – 1031, 2010.
- [78] A. Vásárhelyi, I. Csige, J. Hakl, and I. Hunyadi. Spatial distribution of radon content of soil-gas and well-waters measured with etched track radon monitors. *Rad. Meas.*, 28(1-6):685 – 690, 1997.
- [79] D. Al-Azmi, B. Snopek, A. M. Sayed, and T. Domanski. A simple bubbling system for measuring radon (^{222}Rn) gas concentrations in water samples based on the high solubility of radon in olive oil. *J. Env. Rad.*, 71(2):175 – 186, 2004.
- [80] B. Erlandsson, B. Jakobsson, and G. Jönsson. Studies of the radon concentration in drinking water from the horst Söderåsen in Southern Sweden. *J. Env. Rad.*, 53(2):145 – 154, 2001.

- [81] Adilson Lima Marques, Wladimir dos Santos, and Luiz Paulo Geraldo. Direct measurements of radon activity in water from various natural sources using nuclear track detectors. *Appl. Rad. Isot.*, 60(6):801 – 804, 2004.
- [82] M. Monnin and J. L. Seidel. An automatic radon probe for earth science studies. *J. Appl. Geophys.*, 39(4):209 – 220, 1998.
- [83] International Atomic Energy Agency. Nucleid data for safeguards: Cumulative fission yields. <http://www-nds.iaea.org/sgnucdat/c3.htm>.
- [84] Yasuhito Igarashi, Hartmut Sartorius, Takashi Miyao, Wolfgang Weiss, Katsuhiko Fushimi, Michio Aoyama, Katsumi Hirose, and Hisayuki Y. Inoue. ^{85}Kr and ^{133}Xe monitoring at MRI, Tsukuba and its importance. *J. Env. Rad.*, 48:191–202, 2000.
- [85] K. S. Nielsen, K. M. Mattson, D. G. Kelly, and L. G. I. Bennett. Environmental radionuclide monitoring programme. *J. Rad. Nucl. Chem.*, 271(3):621–627, 2007.
- [86] W. C. Sidle. Apparent ^{85}Kr ages of groundwater within the Royal watershed, Maine, USA. *J. Env. Rad.*, 91:113–127, 2006.
- [87] J. D. Miller, W. Fitch, and B. D. Cameron. Regional cerebral blood flow measurement in the presence of raised intracranial pressure: A comparison between thermal and krypton-85 beta clearance. *J. Serg. Res.*, 9(7):399 – 407, 1969.
- [88] P. G. Cook and D. K. Solomon. Recent advances in dating young groundwater: Chlorofluorocarbons, $^3\text{H}/^3\text{He}$ and ^{85}Kr . *J. Hydrol.*, 191:245–265, 1997.
- [89] Josef Held, Siegmund Schuhbeck, and Werner Rauert. A simplified method of ^{85}Kr measurement for dating young groundwaters. *Appl. Rad. Isot.*, 43(7):939–942, 1992.
- [90] T. Okai, Y. Takashima, N. Shiraishi, and N. Matsuoka. Measurement of krypton-85 in the atmosphere with a portable apparatus. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 81(1):161–165, 1984.
- [91] N. I. Sax, J. D. Denny, and R. R. Reeves. Modified scintillation counting technique for determination of low level krypton-85. *Anal. Chem.*, 40(12):1915–1916, 1968.
- [92] A. Ringbom, T. Larson, A. Axelsson, K. Elmgren, and C. Johansson. SAUNA — a system for automatic sampling, processing, and analysis of radioactive xenon. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 508:542–553, 2003.

- [93] K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, T. Boshkova, and V. Zhivkova. Measurement of Krypton-85 in water by absorption in polycarbonates. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 603:491–494, 2009.
- [94] C. Leroy, D. Maro, D. Hébert, L. Solier, M. Rozet, S. Le Cavelier, and O. Connan. A study of the atmospheric dispersion of a high release of krypton-85 above a complex coastal terrain, comparison with the predictions of Gaussian models (Briggs, Doury, ADMS4). *J. Env. Rad.*, 101:937–944, 2010.
- [95] R. Gurriaran, D. Maro, P. Bouisset, D. Hebert, G. Leclerc, D. Mekhlouche, M. Rozet, and L. Solier. In situ metrology of ^{85}Kr plumes released by the COGEMA La Hague nuclear reprocessing plant. *J. Env. Rad.*, 72:137–144, 2004.
- [96] Weather Online. <http://www.weatheronline.co.uk/weather/news/fukushima>.
- [97] S. Georgiev, K. Mitev, D. Pressyanov, T. Boshkova, and I. Dimitrova. Measurement of ^{133}Xe in air by absorption in polycarbonates – detection limits and potential applications. In *IEEE NSS/MIC Conference record*, pages NP1.M–85, Valencia, Spain, October 2011.
- [98] Commission of the European Communities. Commission recommendation of 18 december 2003 on standardised information on radioactive airborne and liquid discharges into the environment from nuclear power reactors and reprocessing plants in normal operation (notified under document number c(2003) 4832). *Official Journal of the European Union*, L 2/36, 2004.
- [99] The Council of the European Union. Council directive 96/29/euratom of 13 may 1996: Laying down the basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the danger arising from ionizing radiation.
- [100] FORSMARK Nuclear Power Station and National Environmental Radioactivity Monitoring. *Technical Report: SE-09/02*. Sweden, February 2009. http://ec.europa.eu/energy/nuclear/radiation_protection/doc/art35/main_findings_sweden_en.pdf.
- [101] J. R. Harvey and A. R. Weeks. Recent developments in a neutron dosimetry system based on the chemical etch of CR-39. *Rad. Prot. Dosim.*, 20(1):89–93, 1987.
- [102] G. Somogyi. Processing of plastic track detectors. *Nucl. Track Det.*, 1(1):3–18, 1977.
- [103] S. Georgiev, D. Pressyanov, K. Mitev, and I. Dimitrova. Calibration of diffusion chambers for measuring ^{222}Rn in air. *BgNS Trans.*, 12(1):3–6, 2008.

- [104] J. L. Picolo, D. Pressyanov, P. Blanchis, M. Barbier, N. Michielsen, D. Grassin, V. Voisin, and K. Turek. A radon 222 traceability chain from primary standard to field detectors. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. B*, 52:427–434, 2000.
- [105] D Pressyanov, I Rusinov, and G Simeonov. Radon progeny deposition in track-detection diffusion chambers. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 435(3):509 – 513, 1999.
- [106] D. Pressyanov. Radon progeny distribution in cylindrical diffusion chambers. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 596(3):446–450, 2008.
- [107] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Poffijn, G. Meesen, and A. Van Deynse. Polycarbonates: A long-term highly sensitive radon monitor. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 447:619–621, 2000.
- [108] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Van Deynse, A. Poffijn, and G. Meesen. Indoor radon detected by compact disks. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 457:665–666, 2001.
- [109] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Poffijn, A. Van Deynse, and G. Meesen. Integrated measurements of ^{222}Rn by absorption in Makrofol. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 516:203–208, 2004.
- [110] L.A. Currie. Limits for qualitative detection and quantitative determination: Application to radiochemistry. *Anal. Chem.*, 40:586–593, 1968.
- [111] Хр. Христов. *Математически методи на физиката*. Наука и изкуство, София, България, 1967.
- [112] А. Н. Тихонов and А. А. Самарский. *Уравнения математической физики*. Наука, Москва, СССР, 1977.
- [113] D. Pressyanov, K. Mitev, I. Dimitrova, and S. Georgiev. Solubility of krypton, xenon and radon in polycarbonates. application for measurement of their radioactive isotopes. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A*, 629:323–328, 2011.
- [114] D. Pressyanov, S. Georgiev, I. Dimitrova, K. Mitev, and T. Boshkova. Determination of the diffusion coefficient and solubility of radon in plastics. *Rad. Prot. Dosim.*, 145(2-3):123–126, 2011.
- [115] R. L. Fleischer. Permeability of caulking compounds to ^{222}Rn . *Health Phys.*, 62(1):91–95, 1992.

- [116] M. Ďurčák and F. Havlík. Experimental study of radon and thoron diffusion through barriers. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 209(2):307–313, 1996.
- [117] V. Labeled, A. Rannou, and G. Tymen. Study of ^{222}Rn permeation through polymer membrains: Application to continuous measurement of ^{222}Rn in water. *Health Phys.*, 63(2):172–178, 1992.
- [118] K. Rovenská and M. Jiránek. 1st international comparison measurement on assessing the diffusion coefficient of radon. *Rad. Prot. Dosim.*, 145:127–132, 2011.
- [119] С. Георгиев, К. Митев, Д. Пресиянов, Г. Герганов, and И. Димитрова. Компютърен код за прецизно пресмятане на активността и дълбочинното разпределение на радиоактивни благородни газове абсорбирани в поликарбонати. In *Сборник с доклади от XXI НАЦИОНАЛЕН НАУЧЕН СИМПОЗИУМ с международно участие МЕТРОЛОГИЯ И МЕТРОЛОГИЧНО ОСИГУРЯВАНЕ.*, pages 278–283, Созопол, България, Септември 2011. Технически Университет – София, Български Метрологичен Институт, Съюз на Метролозите в България, АЕЦ Козлудуй, Издателство ”ТУ-София”.
- [120] K. Mitev, R. Tsibranski, V. Avramov, B. Stoenelova, I. Dimitrova, T. Boshkova, and S. Georgiev. Measurements of ^{131}I , ^{134}Cs and ^{137}Cs in environmental samples in Bulgaria after the Fukushima accident. In *IEEE NSS/MIC Conference record*, pages NP3.M–118, Valencia, Spain, October 2011.
- [121] S. Georgiev, K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, and T. Boshkova. Numerical modelling of the activity concentration measurements of beta-radioactive noble gases by absorption in polycarbonates and external beta-counting. *Rad. Meas.*, 2012. accepted.
- [122] С. Георгиев, И. Димитрова, Т. Бошкова, К. Митев, and Д. Пресиянов. Определяне на ефективността за регистрация на алфа-частици на установка за измерване на ниски бета-активности УМФ-1500. In *Сборник с доклади от XX НАЦИОНАЛЕН НАУЧЕН СИМПОЗИУМ с международно участие МЕТРОЛОГИЯ И МЕТРОЛОГИЧНО ОСИГУРЯВАНЕ.*, pages 283–289, Созопол, България, Септември 2010. Технически Университет – София, Български Метрологичен Институт, Съюз на Метролозите в България, АЕЦ Козлудуй, Издателство ”ТУ-София”.
- [123] В. М. Колобашкин, П. М. Рубцов, В. Г. Алексанкин, and П. А. Ружанский. *Справочник: Бета-излучение продуктов деления.* Атомиздат, Москва, СССР, 1978.

- [124] F. Salvat, J. M. Fernández-Varea, and J. Sempau. PENELOPE-2006: A code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport. *Issy-les-Moulineaux, France: OECD/NEA Data Bank.*, 2006. <http://www.nea.fr/lists/penelope.html>.
- [125] J. Sempau, J.M. Fernandez-Varea, E. Acosta, and F. Salvat. Experimental benchmarks of Monte Carlo code PENELOPE. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. B*, 207:107–123, 2003.
- [126] F. Salvat and J. M. Fernández-Varea. Overview of physical interaction models for photon and electron transport used in Monte Carlo codes. *Metrologia*, 46:S112–S138, 2009.
- [127] K. Mitev. *Numerical modeling of the processes in proportional counters used for absolute measurement of activity concentration of Krypton-85*. PhD thesis, University Toulouse III "Paul Sabatier", Toulouse, France, 2005.
- [128] M. Vilches, S. García-Pareja, R. Guerrero, M. Anguiano, and A. M. Lallena. Monte Carlo simulation of the electron transport through thin slabs: A comparative study of PENELOPE, GEANT3, GEANT4, EGSnrc and MCNPX. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sec. B*, 254:219–230, 2007.
- [129] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and M. D. Ziegler. The stopping range of ions in matter. <http://www.srim.org/>.
- [130] Royal Society of Chemistry. Visual elements periodic table. <http://www.rsc.org/chemsoc/visualelements/>.