

# Софийски университет "Св. Климент Охридски"

# Физически факултет

# Добромир Стефанов Пресиянов

# РАДИОЛОГИЧНИ ПРОБЛЕМИ СВЪРЗАНИ С РАДОНА И НОВИ МЕТОДИ ЗА ТЯХНОТО ИЗСЛЕДВАНЕ

ΑΒΤΟΡΕΦΕΡΑΤ

# на дисертация за придобиване на научната степен "доктор на науките"

Направление: "Физически науки" Научна специалност: "Ядрена физика"

> София 2012

Дисертацията е на английски език, оформена на 310 страници в осем глави, литература и две приложения. В текста са включени 91 фигури и 26 таблици. Цитирани са 253 литературни източника. Изследванията са проведени в България (основно във Физически факултет към СУ), Франция (Национална лаборатория "Анри Бекерел" към Комисариат по атомна енергия) и Белгия (Институт по субатомна и радиационна физика към Университета в Гент). Понастоящем авторът е доцент във Физически факултет при СУ "Св. Климент Охридски".

#### I. Увод

През 2009 г. Световната Здравна Организация (СЗО) посочи облъчването от радон като втора по важност причина за белодробен рак, след тютюнопушенето [1]. За хора, които никога не са пушили това е посочено като причина номер едно. По този начин продължилите няколко десетилетия изследвания в различни страни доведоха до идентифицирането на радона като един от най-важните радиологични фактори за съвременния човек, като при това рискът за населението е пряко установен [2, 3]. Трябва да се отбележи, че повишеният риск от радон за различни професионални групи (подземни миньори от уранови и някои не-уранови рудници и др.) е отдавна идентифициран. През 1951 г. Bale [4] показва, че дозата в белите дробове се дължи на късоживущите разпадни продукти на радона (наричани още "дъщерни продукти на радона" – това са изотопите <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi и <sup>214</sup>Po, като последният е винаги в равновесие с <sup>214</sup>Ві и не се разглежда самостоятелно). Проблемът радон поставя редица предизвикателства пред дозиметрията, доколкото методите за измерване както на радон, така и на разпадните му продукти са по същество ядренофизични. При това, предпочитани са т. нар кумулативни методи, при които се измерва интегрираната по време обемна активност.

В дисертацията са дадени изследвания и резултати, получени от или с участието на автора в периода 1994 – 2012 г. Основните направления, в които са получени съществени приноси и които се съдържат в дисертацията са:

- Методични изследвания на дифузионни камери с твърдотелни детектори на следи за кумулативни измервания на <sup>222</sup>Rn;
- Методични изследвания върху дискретни и кумулативни методи за измерване на разпадни продукти на <sup>222</sup>Rn и <sup>220</sup>Rn, приложими за сгради и околна среда;
- Обобщаване на данните за облъчването на български миньори от уранови и някои метални рудници. Използване на тези оценки в био-медицински изследвания;
- Идентификация на рискови райони в страната и провеждане на изследвания в тях;
- Разработване на нов метод за кумулативни измервания на радон, използващ високата абсорбираща способност на поликарбонати на основата на бисфенол-А. Теоретични и експериментални изследвания на този "поликарбонатен метод". Предлагане на версии, приложими за измерване във водна среда. Участие в международни сравнения;
- На база на поликарбонатния метод, разработване на нов метод за ретроспективни измервания на <sup>222</sup>Rn чрез използване на съхранявани в сгради компакт-дискове (CD/DVD) в качеството на детектори на радон. Използва се обстоятелството, че конструктивния материал, от който са направени съвременните CD/DVD е поликарбонат на основата на бисфенол-А. Теоретични и експериментални изследвания на този метод. Приложение за реални измервания, вкл. идентифициране на сгради с повишени концентрации на радон.

- Теоретични и експериментални изследвания на метод, използващ поликарбонатен материал като външен абсорбер/радиатор, куплиран с твърдотелен детектор на следи;
- Предлагане и изследване на метод за ретроспективни измервания на торон ( $^{220}$ Rn) посредством CD/DVD. Така създадения разширен метод позволява, по един диск да се оцени ретроспективно концентрацията както на  $^{222}$ Rn, така и на  $^{220}$ Rn.

Изследванията, отразени в дисертацията са проведени в България, Белгия (в Университета в Гент) и Франция (в Национална лаборатория "Анри Бекерел" към Комисариат по атомна енергия, изследователски център в Сакле).

# II. Кумулативни измервания на <sup>222</sup>Rn посредством дифузионни камери

Едни от най-широко използваните детектори за кумулативни измервания на радон са т. нар. диелектрични детектори на следи (solid state nuclear track detectors -SSNTD). Този метод започва да се развива след откритието на Юнг [5] и особено интензивно след разработките, проведени в лабораториите на General Electric през 60-те и 70-те години на миналия век [6]. В България този метод намира по-широко приложение главно в научните изследвания, в геоложките проучвания, а след 90-те години и за измервания на радон в жилища и в околна среда. Вероятно най-широко използваното средство за кумулативни измервания на радон в света са дифузионните камери с детектори на следи [7]. Снимки на използвани за практически измервания дифузионни камери в лаборатория "Дозиметрия и лъчезащита" са показани на Фиг. 1.



**Фигура 1.** Използвани във Физически факултет при СУ дифузионни камери с метален (вляво) и пластмасов (вдясно) корпус. Отворът на пластмасовите камери е покрит с полиетиленово фолио, което спира дъщерните продукти пропуска (по дифузионен път) само <sup>222</sup>Rn.

Принципът на действие на дифузионните камери е следният: Детекторът на следи е закрепен върху основата (за пластмасовите) или върху капака (за металните) дифузионни камери. Радонът прониква във вътрешния обем на камерата по дифузионен път. При разпадането му се генерират разпадни продукти (късоживущите разпадни продукти на <sup>222</sup>Rn ca: <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi + <sup>214</sup>Po, като поради късия си период на полуразпадане <sup>214</sup>Po е винаги в равновесие с <sup>214</sup>Bi и не се разглежда самостоятелно). Излъчените от алфа-активните изотопи (<sup>222</sup>Rn, <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Po) алфа частици бомбардират повърхността на детектора и формират латентни следи. Латентните следи са нанометрични формирования, които са видими само с електронен микроскоп. След подходяща химическа обработка ("ецване") обаче техните размери могат да се увеличат до степен да могат да се наблюдават с оптичен микроскоп, компютърен скенер с висока разделителна способност и др. За да се прояви следата като ецван трек обаче, енергията и ъгълът на падане на падащата алфа частица трябва да попадат в определен, специфичен за всеки детектор и режим на ецване диапазон, задаван посредством т. нар. "функция на

отклик". Експериментално определената в лаборатория "Дозиметрия и лъчезащита" при Физически факултет "функция на отклик" за използваните детектори Kodak Pathe LR-115/II е показана на Фиг. 2 [8].



**Фигура 2.** Функция на отклик на SSNTD Kodak Pathe LR-115 type II след ецване с 10% NaOH при  $60^0$  C в продължение на 120 min и визуално броене на следите под микроскоп.

Горната "функция на отклик" е получена чрез визуално броене на следите с помощта на оптически микроскоп. При масови измервания визуалното броене създава проблеми с това, че е трудоемко и с относително ниска производителност. Затова, още от първите години на приложение на трековия метод за измервания на радона авторът, в сътрудничество с други изследователи, участва в разработването на методи за автоматично броене на следи. Бяха разработени и успешно тествани два такива метода, които са описани в дисертацията. Първият [9] използва нарушеното пълно вътрешно отражение на лазерен лъч върху ецван трек, а вторият използва сканиране на детектора с компютърен скенер с висока разделителна способност и обработка на образа със специално разработен за целта софтуер [10]. Понастоящем по-широко използван от нас метод е вторият.

Както по света, така и в нашата практика се използват различни по вид и размери дифузионни камери с различен вид детектори на следи в тях (най-широко използвани са CR-39, LR-115/II, Makrofol). Тъй като паралелно с лабораторните изследвания се налагаше да провеждаме голям брой реални измервания в рискови райони в страната, в рамките на международно сътрудничество извършихме сравнителни измервания и калибриране на използвания за целта вид дифузионни камери, при което бе осигурена тяхната метрологична проследимост до най-точния понастоящем в света първичен радонов стандарт [11]. Процедурата, чрез която е осигурена тази проследимост е описана в дисертацията.

По отношение на дифузионните камери, тяхната чувствителност (изразена чрез «калибровъчен фактор», *CF* = (нетен брой следи върху единица

площ)/(кумулативна обемна активност на <sup>222</sup>Rn), като под нетен брой следи се разбира броят следи, от който е изваден фоновият брой) се определя от "функцията на отклик" на детекторите и от разпределението на източника, формиращ сигнал. Доколкото в нашата практика в дифузионните камери използваме изключително детектори Kodak Pathe LR-115/II, изследванията проведени върху техния отклик ни осигуриха нужната информация за по-нататъшни разработки. Затова вниманието ни бе насочено към изясняване на разпределението на източника. Този източник е на ос насочено към изясняване на разпределението на пото нима. Този ного на с намиращият се вътре в камерата <sup>222</sup>Rn и неговите дъщерни продукти, по специално алфа-активните изотопи <sup>218</sup>Po и <sup>214</sup>Po. Доколкото за <sup>222</sup>Rn може да се приеме, че разпределението му вътре в обема на дифузионната камера е хомогено, тъй като техните размери (по правило < 10 cm) са много по-малки от дължината му на дифузия във въздух (около 2 метра), не стоят така нещата с разпределението на дъщерните атоми. Голяма част от тях се отлагат върху вътрешните стени на камерата, а тези, които се намират във въздушна среда не са хомогенно разпределени. Ето защо изясняването на въпроса с тяхното разпределение привлече вниманието на редица автори през последните две десетилетия [12]. Нашите първи изследвания в тази насока бяха проведени в края на 90-те години. В основата на теоретичния модел е системата уравнения, описваща дифузията на атомите от разпадната верига на <sup>222</sup>Rn, с отчитане на радиоактивното им разпадане. Тази система има вида:

$$\frac{\partial n_{1}}{\partial t} = D\left(\frac{\partial^{2} n_{1}}{\partial x^{2}} + \frac{\partial^{2} n_{1}}{\partial y^{2}} + \frac{\partial^{2} n_{1}}{\partial z^{2}}\right) - \lambda_{1} n_{1} + a$$

$$\dots \qquad , \qquad (1)$$

$$\frac{\partial n_{i}}{\partial t} = D\left(\frac{\partial^{2} n_{i}}{\partial x^{2}} + \frac{\partial^{2} n_{i}}{\partial y^{2}} + \frac{\partial^{2} n_{i}}{\partial z^{2}}\right) + \lambda_{i-1} n_{i-1} - \lambda_{i} n_{i}$$

където *a* е обемната активност на <sup>222</sup>Rn, *n<sub>i</sub>* са концентрациите на дъщерните продукти на радона (i=1,2,3 съответно за <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb и <sup>214</sup>Bi), а  $\lambda_i$  са съответните постоянни на разпадане. За разпределението на <sup>222</sup>Rn се приема, че е хомогенно (т. е. *a* = const.). Първоначално, тази система бе числено решавана, като на база на

решенията след това се пресмяташе обемната фракция  $f_i = \frac{\int \lambda_i n_i dV}{aV} = \frac{\int C_{Ai} dV}{aV}$ , а

впоследствие и отложената върху стените фракция  $1-f_i$ . При численото моделиране се установи, че обемните фракции на <sup>214</sup>Ві и <sup>214</sup>Рb са много по-малки от тази на <sup>218</sup>Ро и вниманието бе съсредоточено само върху разпределението на последния радионуклид. На Фиг. 3 са показани изолинните за еднаква отложена фракция за цилиндрични камери с различни размери и при различни стойности на коефициента на дифузия [13].

Както е отбелязвано и от други автори [12], един проблем свързан с дифузионните камери стои нерешен. Това е проблемът с нехомогенното разпределение на дъщерните продукти на <sup>222</sup>Rn вътре в обема на камерата и по стените. Докато този проблем не е задоволително решен, редица въпроси свързани

с чувствителността на камерите, неопределеностите в резултата, както и зависимост от различни външни фактори (температура, налягане и пр.) ще стоят без задоволително решение. Във връзка с това авторът си постави задача да изясни на база на теоретичен модел това разпределение и да провери дали изводите от него се съгласуват с експеримента. Тези изследвания бяха проведени след 2005 г. и доведоха до построяване на модел, а за камери с проста форма (напр. цилиндрични, каквито са най-широко използваните) и до получаване на аналитични изрази за разпределението.





**Фигура 3.** Изолинии на отложена по стените фракция на <sup>218</sup>Ро за цилиндрични дифузионни камери, в зависимост от техния диаметър и височина.

В основата на аналитичния модел са същите дифузионни уравнения, използвани и в по-ранното числено моделиране. На база на техните решения бе получен следния израз за обемното разпределение на дъщерните продукти в цилиндрична камера с радиус R и височина H [14]:

$$C_{Ai(i>1)}(r,z,t) = \frac{8a}{\pi} \left(\prod_{q=1}^{i} \lambda_q\right)_{k=1}^{i} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{J_0\left(\frac{\kappa_m}{R}r\right)}{\kappa_m J_1(\kappa_m)} \sin\left(\frac{(2n+1)\pi}{H}z\right) \times \frac{1 - \exp\left(-\lambda_{2n+1,m}^{(k)}t\right)}{(2n+1)\lambda_{2n+1,m}^{(k)}\prod_{j=1, j\neq k}^{i} \left(\lambda_j - \lambda_k\right)}$$

$$\tag{2}$$

където  $J_0$  и  $J_1$  са функциите на Бесел, съответно от нулев и първи ред,  $\kappa_m$  са корените на функцията на Бесел от ред 0, а  $\lambda_{nm}^{(k)}$  се дава с израза:

$$\lambda_{nm}^{(k)} = \lambda_k + D\left(\left(\frac{\kappa_m}{R}\right)^2 + \left(\frac{n\pi}{H}\right)^2\right)$$
(2')

На тази база бе изведен израз и за техните обемни фракции:

$$f_{i} = \frac{32}{\pi^{2}} \left( \prod_{q=1}^{i} \lambda_{q} \right) \sum_{k=1}^{i} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^{2} \kappa_{m}^{2} \lambda_{2n+1,m}^{(k)} \prod_{j=1, j \neq k}^{i} \left( \lambda_{j} - \lambda_{k} \right)}$$
(3)

Този модел позволи да се получат изрази и за разпределението (изразено чрез повърхностна активност) на отложените по стените атоми на дъщерните продукти:

• Върху околните стени (*r*=*R*):

$$A_{Si} = \frac{8Da}{\pi R} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)} \sin\left(\frac{(2n+1)\pi}{H}z\right) Q_{nm}^{(i)}.$$
(4)

• Върху основите, съответно дъно (z=0) и горна основа (z=H):

$$A_{Si} = \frac{8Da}{H} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{\kappa_m J_1(\kappa_m)} J_0\left(\frac{\kappa_m}{R}R\right) Q_{nm}^{(i)}.$$
(5)

където:

$$\mathcal{Q}_{nm}^{(1)} = \frac{1}{\lambda_{2n+1,m}^{(1)}}$$

$$\mathcal{Q}_{nm}^{(2)} = \mathcal{Q}_{nm}^{(1)} + \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{2n+1,m}^{(1)}(\lambda_{2} - \lambda_{1})} + \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{2n+1,m}^{(2)}(\lambda_{1} - \lambda_{2})}$$

$$\mathcal{Q}_{nm}^{(3)} = \mathcal{Q}_{nm}^{(2)} + \frac{\lambda_{1}\lambda_{2}}{\lambda_{2n+1,m}^{(1)}(\lambda_{2} - \lambda_{1})(\lambda_{3} - \lambda_{1})} + \frac{\lambda_{1}\lambda_{2}}{\lambda_{2n+1,m}^{(2)}(\lambda_{1} - \lambda_{2})(\lambda_{3} - \lambda_{2})} + \frac{\lambda_{1}\lambda_{2}}{\lambda_{2n+1,m}^{(3)}(\lambda_{1} - \lambda_{3})(\lambda_{2} - \lambda_{3})}$$
(6)

Получените зависимости за обемните фракции за камера с R=4 cm, H=7.5 cm в зависимост от коефициента на дифузия са показани на Фиг. 4. Направеното сравнение с резултатите от числено моделиране (Фиг. 4а) показва, че е налице съвпадение между стойностите по ааналитичния и по числения модел.



**Фигура 4.** Обемни фракции на  $^{218}$ Ро (А),  $^{214}$ Рb (В) и  $^{214}$ Вi (С) в зависимост от коефициента на дифузия.

В същата глава от дисертацията е описан вариант на дифузионни камери, при който едновременно се използват детектори SSNTD и TLD. Тези камери имат разширен диапазон на чувствителност в посока високи концентрации и са подходящи за измервания в почвен газ, особено в райони в които могат да се очакват високи нива на радон.

## III. Измервания на разпадни продукти на <sup>222</sup>Rn и <sup>220</sup>Rn

Късоживеещите продукти на разпадане на <sup>222</sup>Rn (или още «дъщерни продукти на радона – ДПР», това са <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi + <sup>214</sup>Po) са идентифицирани през 1951 г. като определящи почти изцяло свързаната с <sup>222</sup>Rn доза в дихателната система [2]. Впоследствие внимание започва да се обръща и на продуктите на разпадане на <sup>220</sup>Rn (ДПТ, това са изотопите <sup>216</sup>Po, <sup>212</sup>Pb, <sup>212</sup>Bi+<sup>212</sup>Po/<sup>208</sup>Tl, но приносът на <sup>216</sup>Po в радиологично отношение обикновено се пренебрегва). В литературата са предложени голям брой методи за измерване на горепосочените продукти на разпадане. В глава III на дисертацията са разгледани следните проблеми:

- Разработване на обобщен алгоритъм за обработка на измервания на дъщерни продукти, включващи пробоотбор върху аерозолен филтър и измерване на лъчението на отложените върху филтъра радионуклиди. Тези изследвания са продължение на изследвания, започнати в кандидатската дисертация на автора [15].
- Разработване на процедура, за получаване и използване на късоживеещи α-източници с енергии 6,0 MeV и 7,69 MeV за калибриране на детектори за дъщерни продукти на <sup>222</sup>Rn;
- Развитие на метода на въртящия се филтър за кумулативни измервания на ДПР (предложен в хода на изследвания свързани с кандидатската ми дисертация) във варианти приложими за измервания на ниски концентрации, характерни за сгради и околна среда, а така също и във вариант подходящ за измерване на ДПТ.

Доколкото във всички изброени задачи имаме отлагане на радионуклиди върху филтър и измерване на тяхното лъчение, бе необходимо да се развие обобщен теоретичен модел за целта. Този модел бе разработен в аналитичен вид, на база на формулите на Bateman [16, 17]. В основата е следната система уравнения, описваща процеса на отлагане и разпадане на радионуклидите <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi(+<sup>214</sup>Po), а така също <sup>212</sup>Pb и <sup>212</sup>Bi(+<sup>212</sup>Po):

$$\frac{dN_1}{dt} = \eta Q n_1 \Theta(T-t) - \lambda_1 N_1;$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \eta Q n_2 \Theta(T-t) + \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2;$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \eta Q n_3 \Theta(T-t) + \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3.$$
(7)

$$\frac{dN_4}{dt} = \eta Q n_4 \Theta(T-t) - \lambda_4 N_4;$$
  
$$\frac{dN_5}{dt} = \eta Q n_5 \Theta(T-t) + \lambda_4 N_4 - \lambda_5 N_5$$

където i=1,2,3,4,5 се отнася за горните 5 радионуклида, съответно в реда в който са подредени (заб.  $^{214}$ Ро и  $^{212}$ Ро не се разглеждат самостоятелно, тъй като са винаги в равновесие със своите предшественици). На основата на тези уравнения бяха

изведени обобщени аналитични изрази, позволяващи реализирането на практически всеки метод за дискретни измервания на дъщерни продукти на <sup>220</sup>Rn и <sup>220</sup>Rn. Дадени са и числени резултати за най-широко използваните в нашата практика измерителни методи.

На базата на този обощен алгоритъм стана възможно да се развие методология за създаване на късоживущи алфа източници с енергия 6,0 MeV и 7,69 MeV. Тези източници, с подходящ избор на времена за пробоотбор, използване и референтно измерване, могат да бъдат подготвени с достатъчна чистота и точност, с която се определя потокът α-частици, за да бъдат използвани за калибриране на детектори [18].

Съществено място в дисертацията е отделено на развитието на метода на въртящия се филтър за кумулативни измервания на дъщерни продукти на радон и торон, във вариант подходящ за измервания в сгради и околна среда. Първият въриант на този метод бе предложен през 1991 г. [15], като в разработените прототипи се използваха TLD. Този вариант бе подходящ за използване при относително високи концентрации – в подземни рудници и пр. Новите приоритети в изследванията, възникнали в началото на 90-те години наложиха провеждане на изследвания, с цел развитие на метода за по ниски концентрации. Тази цел е постигната с използването на SSNTD като детектори. Принципът на действие е показан на Фиг. 5.



**Фигура 5.** Принципна схема на дозиметър за кумулативни измервания на ДПР тип "въртящ се филтър".

Филтърът се върти равномерно (с период 1 час във версията за дъщерни продукти на радона и 12 часа във версията за дъщерни продукти на торона) и преминава последователно през смукателна дюза и под разположените както е показано на фигурата детектори. Детекторите са покрити с подходящи абсорбери, комбиниращи намалянето на енергията на  $\alpha$ -частиците в абсорбера с енергетичноъгловата чувствителност на детекторите (използваните от нас бяха само Kodak Pathe LR-115/II) за да се постигне избирателна регистрация. По този начин сектор А регистрира основно  $\alpha$ -частици с енергия 6,0 MeV, В с 7,69 MeV, а С с 8,78 MeV. Снимка на конструирания прототип, с който бяха извършени измервания в лабораторни и реални условия, описани в дисертацията е показан на Фиг. 6.



**Фигура 6.** Прототип на дозиметър тип «въртящ се филтър» с който са направени измерванията дадени в дисертацията.

Значително място в дисертацията е отделено на разработването на метод за обработка на измерванията. Получен е следният израз за плътността на следите, в зависимост от ъгъла на разположение на съответната точка от детектора (Фиг. 7):

$$N_{tr}(\varphi) = \int_{0}^{\infty} \dot{N}_{tr}(t,\varphi) dt = \sum_{i=1}^{3} \sum_{k=0}^{\infty} f_i (\varphi/\omega + kT) \int_{0}^{t_a} x_i(\tau) d\tau = \sum_{i=1}^{3} G_i(\varphi) X_i,$$
(8)

където  $X_i = \int_{0}^{t_a} x_i(\tau) d\tau$  and  $G_i(\varphi) = \sum_{k=0}^{\infty} f_i(\varphi/\omega + kT)$ . Параметрите  $X_i$  са линейно свързани с кумулативните (интегрирани по време) обемни активности на съответните радионуклиди.

Експлицитният израз за функцията *G<sub>i</sub>* е:

$$G_i(\varphi) = \frac{\left(\exp(\lambda_i t_F) - 1\right)\exp(-\lambda_i \varphi/\omega)}{1 - \exp(-2\pi\lambda_i/\omega)}.$$
(9)



Фигура 7. Геометрия на сектор.

На тази основа, чрез нетния брой следи в даден сектор могат да се определят кумулативните обемни активности на индивидуалните радионуклиди, посредством формулите:

$$C_{k} = C(\varphi_{k}) = \sum_{i=1}^{3} F_{i}(\varphi_{k}) X_{i}$$

$$I_{i} = \sum_{j=1}^{3} {}_{r} R_{ij}^{-1} X_{j}, \qquad (10)$$

където явният вид на матрицата  $_{r}R^{-1}$  и функциите  $F_{i}$  е както следва:

$${}_{r}R^{-1} = \frac{1}{V\eta\varepsilon_{3}^{(B)}} \begin{pmatrix} \frac{\lambda_{1}(\lambda_{1}-\lambda_{2})(\lambda_{1}-\lambda_{3})}{\lambda_{2}\lambda_{3}} & 0 & 0\\ -\frac{\lambda_{1}(\lambda_{1}-\lambda_{3})}{\lambda_{3}} & -\frac{\lambda_{2}(\lambda_{2}-\lambda_{3})}{\lambda_{3}} & 0\\ \lambda_{1} & \lambda_{2} & \lambda_{3} \end{pmatrix}$$
(11)

$$F_{i}(\varphi_{k}) = \frac{2hr_{c}\omega}{\lambda_{i}} sh(\lambda_{i}\Delta\varphi_{k}/\omega) \frac{(\exp(\lambda_{i}t_{F}) - 1)\exp(-\lambda_{i}(\varphi_{k}/\omega))}{1 - \exp(-(2\pi/\omega)\lambda_{i})} \times \left[1 + \delta_{k1} \left[ \left(\varepsilon_{3}^{(A)}/\varepsilon_{3}^{(B)}\right) + \frac{(\lambda_{1} - \lambda_{2})(\lambda_{1} - \lambda_{3})\varepsilon_{1}^{(A)}}{\lambda_{2}\lambda_{3}\varepsilon_{3}^{(B)}} \delta_{i1} - 1 \right] \right]$$
(12)

Използвайки разработения теоретичен модел стана възможно, чрез моделиране, да бъде оптимизирана конструкцията на устройството, предназначено за реални измервания. Например на Фиг. 8 е показано, как бе определена оптималната ъглова ширина на А-сектора:



Фигура 8. Намиране на оптималната ширина на А-сектор.

С помощта на този метод бяха проведени редица измервания. При част от тях (главно тези, които се провеждаха в лабораторни условия) бе правено сравнение чрез паралелно провеждана серия от дискретни измервания по утвърдени методи. Кумулативните концентрации се определят чрез числено интегриране на резултатите от тази серия. Такова сравнение е показано на Таблица 1. Вижда се вного доброто съвпадение между резултатите, получени по различните методи. Същото се наблюдаваше и при други паралелни лабораторни серии, чиито резултати са представени в дисертацията.

**Table 1.** Интегрирани обемни активности на дъщерните продукти на <sup>222</sup>Rn определени по метод на "въртящия се филтър) сравнени с получени при паралелна серия дискретни измервания (Bq h m<sup>-3</sup>).

Метод на въртящия се филтър		Дискретни измервания [19]			
<sup>218</sup> Po	<sup>214</sup> Pb	<sup>214</sup> Bi	<sup>218</sup> Po	<sup>214</sup> Pb	<sup>214</sup> Bi
870 ± 150	930 ± 120	$700 \pm 140$	$830\pm100$	$770 \pm 25$	$590\pm32$
249 ± 21	$101 \pm 26$	$72 \pm 20$	$234\pm39$	119 ± 9	60 ± 12
599 ± 72	$369 \pm 54$	$280 \pm 60$	554 ± 168	381 ± 55	$329\pm34$
196 ± 16	62 ± 14	52 ± 15	159 ± 79	$40 \pm 20$	$20 \pm 15$
$530 \pm 40$	$446 \pm 29$	$336 \pm 40$	$659\pm90$	$466 \pm 60$	$390\pm39$
$4500 \pm 250$	$1410\pm110$	$490\pm70$	$5050\pm460$	$1760 \pm 190$	570 ± 130

При версията за <sup>212</sup>Pb и <sup>212</sup>Bi/<sup>212</sup>Po детекторите бяха покрити само с един вид абсорбер: С-абсорбер, позволяващ регистриране само на алфа частици с енергия 8,78 MeV. Формулите за този метод са както следва:

$$C(\varphi) = \sum_{i=4}^{5} F_i(\varphi) X_i$$
(13)

$$F_{i}(\varphi) = \frac{2hr_{c}\omega}{\lambda_{i}}sh(\lambda_{i}\Delta\varphi/\omega)\frac{(\exp(\lambda_{i}t_{F})-1)\exp(-\lambda_{i}(\varphi/\omega))}{1-\exp(-(2\pi/\omega)\lambda_{i})}$$
(14)

$$\begin{pmatrix} I_4 \\ I_5 \end{pmatrix} = \frac{1}{V\eta} \begin{pmatrix} -\frac{\lambda_4(\lambda_4 - \lambda_5)}{\varepsilon \lambda_5} & 0\\ \frac{\lambda_4}{\varepsilon} & \frac{\lambda_5}{\varepsilon} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X_4 \\ X_5 \end{pmatrix}$$
(15)

Методът бе тестван само в лабораторни условия, показвайки много добро съвпадение с паралелно проведените референтни измервания.

#### IV. Изследвания по радиологични проблеми свързани с радона в България

Интересно е да се отбележи, че България е една от първите страни в света, в които започват измервания на радон в околната среда. Налице са сведения, че още през 1907 г. група ентусиасти, сред които и проф. Петър Пенчев от Софийски Университет провеждат измервания на съдържанието на радон в минерални води, посредством собственоръчно направена йонизационна камера [20]. Въпреки, че изследвания свързани с радона се провеждат практически без прекъсване повече от един век, те никога не придобиват особено големи мащаби. Всъщност, най-голям брой измервания на радон и дъщерните му продукти са направени от службите за дозиметричен контрол в урановата промишленост. През периода 1958 - 1991 г. са извършени общо около 50000 измервания, повечето от тях в уранови мини [21], но също и в някои неуранови. От неурановите минни обекти относително най-пълна е базата с радиационни измервания за мините от група "Росен" към Бургаски медни мини. В началото на 90-те години се пристъпи към закриване и ликвидация на урановата промишленост. Актуална стана обаче задачата за изясняване на здравния статус и влиянието на облъчването от радон върху здравния риск на подземните миньори. За целта беше важно да се систематизира и обобщи цялата налична информация за облъчването на миньорите. Първи най-общи сведения бяха публикувани от Узунов и съавт. [21]. Във връзка с участието си в научен екип, провеждащ изследвания за предракови състояния на бронхиалния епител на уранови и неуранови миньори, авторът инициира детайлизирано обобщаване на облъчването по отделни руднични обекти. Традиционно, облъчването от дъщерни продукти на радона се изразява чрез единицата WLM (Working Level Month). Един WLM е облъчване, което се получава при работа при концентрация на потенциалната енергия на алфа разпадане на дъщерните продукти на радона 1,3х10<sup>5</sup> MeV/L в продължение на 170 часа (това е приблизително един работен месец). В дисертацията са дадени резултати за "кумулираното облъчване" по работните места на главните уранови рудници, работили в периода 1958 – 1990 г., както и за групата "Росен" към Бургаски медни мини:

$$CWLM(n) = \sum_{i=i_0}^{n} WLM(i), \qquad (16)$$

където  $i_0$  е началната година, в която е започнал работа обекта или от която се провежда радиационен контрол. По този начин облъчването на един "среден" миньор, започнал работа в година  $n_1$  и продължил до година  $n_2$  ще бъде CWLM $(n_2)$ – CWLM $(n_1)$ . На Фиг. 9 е показано "кумулираното облъчване" за трите рудника от групата "Росен".



**Фигура 9.** Кумулирано облъчване по работните места на подземните рудници от група "Росен". Рудниците са както следва: 1 – Пропаднала вода, 2 – Меден рид, 3 – Росен.

Тези резултати бяха използвани при изследванията на предракови състояния (бронхиална дисплазия) сред подземни миньори, които бяха проведени в началото на 90-те години. При анализа на резултатите бе наблюдавана отчетлива и статистически значима зависимост "доза-ефект" – положителна корелация между полученото облъчване и честотата на бронхиална дисплазия [22].

През 90-те години на миналия век значително нарастна интересът кам проблемите, свързани с радона в жилища и околна среда. През последните две десетилетия усилията бяха насочени главно към "рискови райони". До момента такива, изследвани с мое участие са:

 Село Елешница, Разложко. Това е вторият по големина център на урановата промишленост в България. В това село са установени повишени концентрации на радон както на открито, така и в голяма част от сградите. Концентрациите на радон и дъщерни продукти на открито следват характерен денонощен ход, показан на Фиг. 10



Фигура 10. Денонощно разпределение на концентрацията на потенциалната алфа енергия на дъщерните продукти на радона.

Град Раковски (население около 17 000 души). В този град хронично се наблюдава повишена честота на случаите на белодробен рак, както за мъже, така и за жени. Това е показано на таблица 2. Причината за тази онкологична "аномалия" дълго време е била неясна. Всъщност първите измервания на радон в жилища в града бяха инициирани и проведени от автора през 1996-97 г. [23]. Още първите резултати показаха наличие на сериозен радонов проблем в голяма част от сградите. Впоследствие бяха проведени две по-мащабни измерителни кампании, които позволиха да се покрие целогодишен интервал. Резултатите са показани на Фиг. 11. В над 50% от сградите в този град могат да се прогнозират средногодишни концентрации на радон над 200 Вq m<sup>-3</sup>. За сравнение този процент средно за жилища е около 2% [21].

**Таблица 2.** Случаи на белодробен рак в гр. Раковски за 1981-1999 сравнени с очакван брой на база градско население в страната.

Group	Observed	Expected	SIR <sup>*</sup> (95% CI)	P-value
Males, $\leq 49y$	34	10.28	3.31 (2.29-4.62)	< 10 <sup>-4</sup>
Males, >49y	140	74.36	1.88 (1.58-2.22)	<10-6
Males, all ages	174	84.64	2.06 (1.76-2.39)	<10-6
Females, all ages	27	14.19	1.90 (1.25-2.77)	<10 <sup>-2</sup>

• SIR = standard incidence ratio



**Фигура 11.** Разпределение на средногодишните обемни активности на <sup>222</sup>Rn в гр. Раковски, на база на измерителна кампания през 2001/2002 г.

 Измервания в райони в Софийското поле, повлияни от урановата промишленост. Такива измерителни кампании се провеждат, макар и в ограничен мащаб, още от 90-те години. До 2005 г. те са провеждани основно с дифузионни камери, а в последните години най широко използвания метод е компакт-дисковия, на който са посветени глави V и VI. В засегнатия район (с. Яна, с. Горни Богров, гр. Бухово, с. Сеславци) в около 50% от изследваните до момента сгради са със средно-годишни нива на радон над 200 Вq m<sup>-3</sup>.

Трябва да отбележим, че първите действащи противорадонови инсталации в страната бяха изградени в проблемни сгради именно в този район. Авторът предоставяше концептуален проект (съобразен със стандартите [25]) и техническа консултация при тяхното изграждане. Във всички случаи до момента е постигано многократно снижаване на концентрациите на радон. Това се вижда на Фиг. 12, където са показани резултатите от проведеното саниране в 47 целодневна детска градина в с. Горни Богров.



**Фигура 12.** Обемни активности на <sup>222</sup>Rn в занималня на 47 целодневна детска градина с. Горни Богров преди техническите мероприятия, след поставяне само на пасивна бариера (средата) и след пускана в действие на пълна (пасивна+активна) противорадонова инсталация. Хоризонталната линия показва нормата за съществуващи сгради от 300 Bq m<sup>-3</sup>, съгласно [26].

#### V. Поликарбонатен метод. Концепция и методология.

Поликарбонатният метод бе предложен от автора, в съавторство с изследователи от Университета в Гент, Белгия през 1999 г. [27]. Първоначално, експерименталните изследвания по този метод бяха провеждани в Университета в Гент, а след 2005 г. главно във Физически факултет при СУ «Св. Климент Охридски». Ключовата идея, заемаща основно място във всички разновидности на този метод (вкл. тези за измерване на изкуствени радиоактивни благородни газове, като <sup>85</sup>Kr, <sup>133</sup>Xe и др.) е в използването на високата способност на поликарбонатни материали на основата на бисфенол-А да абсорбират благородни газове. Тези материали са широкоразпространени и се предлагат под различни търговски наименования (Makrofol, Makrolon, Lexan, Iupilon и др.). Те са основния конструктивен материал, от който са изработени практически всички CD/DVD.

Концепцията на първоначално предложения и най-широко прилаган вариант на поликарбонатния метод за измерване на радон е илюстрирана на Фиг. 13.



**Фигура 13.** Следи от алфа частици в поликарбонатния материал. В дълбочина под пунктирната линия (> 76 µm под повърхността), следите се дължат само на абсорбирания радон и продуктите му на разпадане. Тройните следи се дължат на  $^{222}$ Rn,  $^{218}$ Po,  $^{214}$ Po – последните два изотопа остават на мястото където са получени и се разпадат там.

Радонът се абсорбира в материала и прониква (по дифузионен път) в дълбочина. Неговите продукти на разпадане обаче, тъй като не са инертни атоми, остават на мястото, където са се появили и разпределението им следва това на радона. Излъчените при разпадане на радона и  $\alpha$ -активните му продукти  $\alpha$ -частици създават латентни дефекти – следи. За да се елиминира влиянието на "външни източници", както и на отложени по повърхността дъщерни продукти, първоначално от повърхността се отнема слой по-дебел от максималния пробег на  $\alpha$ -частиците от веригите на разпадане на <sup>222</sup>Rn и <sup>220</sup>Rn. Тази дебелина е > 80 µm, но отчитайки факта, че  $\alpha$ -частици с енергия под определен праг не водят до поява на следи, се оказва дастатъчно тя да е > 76 µm. Отнемането на повърхностния слой се извършва посредством химическа обработка (пре-ецване). След това следите се

проявяват с електрохимично ецване, посредством конструирана за целта установка. Ецването се осъществява посредством комбинирано въздействие на химически реагент (разтвор на калиева основа и етанол) и високочестотно електрично поле (6 kHz, 3 kV<sub>eff</sub>/mm). В резултат на този процес размерът на следите се увеличава до степен те да са видими дори с просто око. След това те се броят – визуално, с микроскоп при малко увеличение, а в последните години и автоматично, посредством компютърен скенер и специално разработен за целта софтуер [28]. При всички проведени до момента лабораторни експерименти се наблюдава почти перфектна корелация (Фиг. 14) между сигнала (брой следи на единица площ) и кумулативната концентрация на радон. Това показва значителен потенциал на този метод за точни измервания.

В резултат на множество експерименти, проведени през 1999 – 2004 г, бе изследвано влиянието на редица фактори, които потенциално биха могли да влияят върху сигнала. Освен това бе експериментално доказано, че  $\alpha$ -частици от "външни" източници ни допринасят за сигнала в изследваната дълбочина. Бе изследвано влиянието на начин на съхранение на CD/DVD (открити или в защитни кутийки), налягане, влажност, запрашеност, температура, присъствие на <sup>220</sup>Rn (за следи в дълбочина > 80 µm). Освен това моделно бе оценено потенциалното влияние на лазерната светлина, чрез която се извършва четене/запис от диска, както и приноса от натрупващия се при дълго време за експониране <sup>210</sup>Po. В резултат на тези изследвания бе установено, че всички фактори, с изключение на температурата, или не оказват влияние, или то е ограничено в рамките на < 10%. Вариации в температурата обаче, в диапазона 2 – 40<sup>°</sup> С могат да окажат влияние в рамките на ± 30%.



**Фигура 14.** Корелация между сигнала (нетна плътност на следите) и интегрираната по време обемна активност на  $^{222}$ Rn, съответно на дълбочина 83 µm ( $\blacktriangle$ ) и 117 µm ( $\bullet$ ).

За да се изследва температурната зависимост, а така също да се оцени доколко свързаните с нея систематични отклонения могат да бъдат отчетени, бяха проведени целенасочени изследвания. Основен акцент в тях бе изясняване на дълбочинното разпределение на сигнала при различни температури. Рузултатите са показани на Фиг. 15. Вижда се, че разпределението в дълбочина е експоненциално (прави линии в полу-логаритмичен мащаб). Това позволява, използвайки различния наклон на тези линии при различни температури а posteriori да бъде коригирано дължащото се на температурата систематично отклонение.



Фигура 15. Разпределение в дълбочина на сигнала (изразен чрез *CF*) при температури 5<sup>°</sup> C (♦), 19,5<sup>°</sup> C (■), 23,5<sup>°</sup> C (●), 38<sup>°</sup> C (▲).

Предвид очерталите се широки перспективи пред използването на поликарбонатния метод, през последните години предприехме теоретични изследвания, с цел разработване на теоретични модели на процесите на сорбция и десорбция и на формирането на сигнал в детектора, които да могат да се използват при практическите приложение

#### V.1. Процесът на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати.

В основата на теоретичния модел е класическата дифузия с отчитане на радиоактивното разпадане [29]. Този процес се описва с уравнението.

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \left( \frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial z^2} \right) - \lambda n \,. \tag{17}$$

В дисертацията са разгледани аналитични решения на това уравнение за плоска пластинка и цилиндър. За изследванията, описани в дисертацията основно значение имат решенията за плоска геометрия. Те са съответно:

$$n_{S}(x,t) = \frac{4Dc}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1}} \left(1 - \exp(-\lambda_{2k+1}t)\right) \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right)$$
(18)

$$n_d(x,t) = \frac{4Dc}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1}} \left(1 - \exp(-\lambda_{2k+1}T)\right) \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right) \exp(-\lambda_{2k+1}t), \quad (19)$$

където  $\lambda_{2k+1} = \lambda (1 + (n\pi L_D/L)^2)$ , като  $\lambda$  е постоянната на разпадане на <sup>222</sup>Rn, L е дебелината на пластинката, а  $L_D$  е дължината на дифузия на <sup>222</sup>Rn в поликарбонатния материал. На база на тези решения се получава израз са абсорбираната в изследвания образец активност:

$$A(t) = \lambda \iiint_{V} n(x, y, z, t) dx dy dz,$$
(20)

като пресмятането на интеграла със заместени в него решения води до израз от вида:

$$A(t) = KC_A VF(t,T), \qquad (21)$$

където *К* е коефициент на разпределение, *V* обем на пластинката, а *F* е функция, която има вида:

$$F(t,T) = \frac{8\lambda L_D^2}{L^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1 - \exp(-\lambda_{2k+1}T)}{\lambda_{2k+1}} \exp(-\lambda_{2k+1}t) .$$
(22)

Този модел се оказа полезен не само при моделиране на процеса на измерване, но също така и за определяне на K,  $L_D$  както в поликарбонатни материали, така и в други хомогенни образци, за които моделът на класическа дифузия е валиден [30]. Този модел е важен за експерименталното определяне на K и  $L_D$ , като за целта бе създадена опитна постановка, схематично показана на Фиг. 16.



**Фигура 16.** Схема на лабораторната установка, използвана за определяне на коефициент на разпределение и дължина на дифузия на радон в образци.

Измерването на експонираните образци (в случая гама-спектрометрично) позволява количествено определяне на активността като фунция на времето – т. нар. крива на десорбция. Пример за такава експериментална зависимост е показан на Фиг. 17. Чрез подобни изследвания взехме успешно участие в международно сравнение, проведено през 2010 г. [31].



**Фигура 17.** Десорбция от поликарбонатен образец. Кривата е теоретичната зависимост, като параметрите K и  $L_D$  са определени по фит по най-малки квадрати по експерименталните точки.

#### V.2. Моделиране на отклика на поликарбонатен детектор

Друга теоретична разработка бе свързана с моделиране на процеса на формиране на треков сигнал в поликарбонатен детектор [32]. Равновесното разпределение на концентрацията на <sup>222</sup>Rn в поликарбонатна пластинка с дебелина 300 µm е показано на Фиг. 18.



Фигура 18. Равновесно разпределение на концентрацията на <sup>222</sup>Rn в поликарбонатна пластинка с дебелина 300 µm.

За да се моделира чувствителността на детектора (изразен чрез калибровъчния фактор), обемното разпределение на детектора се разглежда съвместно с функцията на отклик на поликарбонатния материал при избрания от нас режим на електрохимична обработка [33, 34]. Геометрията на облъчване на избрано поле е показана на Фиг. 19:



**Фигура 19.** Геометрия на облъчване на поле  $\Delta S$  разположено на дълбочина *x* под повърхността

В резултат на проведения математически анализ, за парциалната плътност на следите, дължащи се на α-частици от i-ти нуклид в дисертацията е получен израза:

$$n_i = \frac{1}{2} K I_0 L_D \left[ A \exp\left(-\frac{x}{L_D}\right) + B \exp\left(\frac{x}{L_D}\right) \right] J_i, \qquad (23)$$

където А и В са константи, чиито явен вид е даден в дисертацията, а *J<sub>i</sub>* се определя чрез (числено пресмятания) израз:

$$J_{i} = \int_{0}^{\theta_{c}} \left[ e^{\frac{R_{i}}{L_{D}}\cos\theta} \left( e^{-\frac{R(E_{L})}{L_{D}}\cos\theta} - e^{-\frac{R(E_{U})}{L_{D}}\cos\theta} \right) + e^{-\frac{R_{i}}{L_{D}}\cos\theta} \left( e^{\frac{R(E_{U})}{L_{D}}\cos\theta} - e^{\frac{R(E_{L})}{L_{D}}\cos\theta} \right) \right] \sin\theta d\theta . (24)$$

Допълнителен фактор е ефективността на процеса на ецване, чрез която се отчита евентуалните вариации на приложеното високо напрежение и дебелината на детектора [35]:

$$\varepsilon(U,h) = 5.7638 \left(\frac{h}{U}\right)^2 - 9.9644 \left(\frac{h}{U}\right) + 3.921.$$
(25)

В резултат, за налибровъчния фактор СF е получен израза:

$$CF = \frac{1}{2} K L_D \left( A e^{-\frac{x}{L_D}} + B e^{\frac{x}{L_D}} \right) J \varepsilon(U, h).$$
<sup>(26)</sup>

За параметризация на модела са използвани експерименталните резултати от наши изследвания през 2001-2002 г [32] както и функцията на отклик, дадена в [33]. Въз основа на тях, в таблица 3 са дадени определените числени стойности на величините, участващи в модела.

meonpegenencernite eu egno erungupmo erundupmo.					
Temperature	L <sub>D</sub> (μm)	J	K, according to	K, according to	
<sup>0</sup> C			CF at 80 µm	CF at 120 µm	
5	42.2±1.6	0.3229	21.5±4.3	22.1±4.8	
19.5	51.7±0.8	0.2338	26.4±2.5	26.5±2.4	
23.5	58.0±0.5	0.1979	25.7±1.5	26.0±1.5	
38	97.2±2.5	0.1034	17.8±1.2	17.8±1.3	

**Таблица 3.** Числени стойности, използвани за параметризация на модела. Неопределеностите са едно стандартно отклонение.

Теоретичните оценки, получени по така параметризирания модел бяха сравнени с експериментални стойности на *CF* от независими експериментални серии

(различни от тези, използвани за параметризация). Сравнението е показано на таблица 4. Вижда се много доброто съвпадение между теория и експеримент.

Polycarbonate specimens	Depth for ECE (µm)	CF- experimental (cm <sup>-2</sup> /kBq h m <sup>-3</sup> )	CF-model (cm <sup>-</sup> <sup>2</sup> /kBq h m <sup>-3</sup> )
Makrofol, 300 µm thick foil	83 ± 3	$0.018 \pm 0.001$	$0.019\pm0.002$
Makrofol, 300 µm thick foil	$117 \pm 3$	$0.013 \pm 0.001$	$0.0142 \pm 0.0016$
CD	$83 \pm 3$	$0.0172 \pm 0.0012$	$0.0182 \pm 0.0021$
CD	$117 \pm 3$	$0.0112 \pm 0.0016$	$0.0111 \pm 0.0013$

Таблица 4. Сравнение между експериментални и теоретични стойности на калибровъчния фактор.

# VI. Метод за ретроспективни измервания на <sup>222</sup>Rn посредством CD/DVD.

Най-използвано до момента, а и най-перспективно приложение на поликарбонатния метод е за ретроспективни измервания на радон, използвайки съхранявани в сгради CD/DVD. Фактът, че практически всички CD/DVD са произведени от поликарбонатен материал на основата на бисфенол-А прави всеки от тях достатъчно добър и точен "детектор на радон". От друга страна, така бива адресиран един от най-важните проблеми в радоновата дозиметрия и оценката на риска от радон: Този за оценка на "минало облъчване". Важността произтича от това, че рискът се формира от предшестващо облъчване, получено години и дори десетилетия преди евентуална клинична изява на свързано онкологично заболяване [36]. Липсата на информация за такова облъчване се оказва главният източник на неопределеност в съвременните преки оценки на риска [37]. За преодоляването на този проблем през последните десетилетия са предложени редица методи за ретроспективни измервания, без обаче да са налице задоволителни резултати откъм точност и възможност за масово използване. По тази причина компактдисковия метод заема своето място сред тях като вероятна крачка напред.

Концептуално, методът е идентичен с "трековия вариант" на поликарбонатния метод. Етапите от обработка на един диск са показани на Фиг. 20. Допълнително и съществено предимство е възможността за "*a posteriori*" индивидуално калибриране. Идеята е от предоставения за анализ диск една част (обикновено четвъртинка или половинка) да се облъчи допълнително при референтна концентрация на радон. След това двете части се обработват едновременно, като "инкремента в сигнала" (разликата в плътността на трековете в облъчения допълнително образец и останалата част) се използва за определяне на СF. За "референтно облъчване" се използва установката, показана на Фиг. 21.



**Фигура 20.** Процеси при анализ на един диск: От диска се изрязва образец (обикновено четвъртинка) (а), който след това се обработва химически и електрохимически (b), след което се сканира (c) и изображението на следите (d) се обработва.



Фигура 21. Установка за калибриране (вкл. a posteriori) на CD/DVD.

За да се оцени потенциалът на компактдисковия метод за точни ретроспективни измервания са проведени множество изследвания в продължение на близо едно десетилетие. "Представянето" на метода и потенциалът му за точни измервания са показани на таблица 5. **Таблица 5.** "Бюджет на неопределеностите" за CD/DVD метода. Относителната неопределеност е дадена като едно стандартно отклонение.

Calibration type	Uncertainty type	Typical, %	Maximal,	Comment
			%	
Standard	Statistical (track			
	density) + calibration	19	19	
Individual (a	Statistical (track			
posteriori)	density) + calibration	9	17	
Standard/Individual	Exposure time	10	50	Maximal for
				disks exposed 1-
				2 years
Standard/Individual	Temperature	15	26	No temperature
	related	(at 80 µm)	(at 120 µm)	correction,
				average
				temperature
				$22^{\circ} \pm 4^{\circ} C$
Individual	Temperature	8.4		
	related, after a	(at 80 µm, 200		
	posteriori temperature	C)		
	correction [51]			
Standard	Combined	26	60	
Individual	Combined	20	60	
Individual, with a	Combined	16		
posteriori				
temperature				
correction				

Оценки на минимално-детектируемата обемна активност за дискове, експонирани 10 години са дадени в таблица 6. В таблицата е дадена и "горна граница", съответстваща на нивото на насищане. Обхватът на чувствителност на метода покрива целия практически важен диапазон от обемни активности на <sup>222</sup>Rn. Трябва да се отбележи, че горната граница на чувствителност може да бъде значително повишена, чрез ецване на по-голяма дълбочина [38] или чрез подходящо редуциране на високото напрежение за електрохимично ецване [32].

Таблица 6. Долна и горна граница на чувствителност при измерване с компакт диск, при време на експониране 10 години.

Детектор и дълбочина на	Минимално	Ниво на насищане
ецване	детектируема обемна	(съответства на сигнал
	активност, <b>Bq m<sup>-3</sup></b>	$4000 \text{ cm}^{-2}$ ) <b>Bq m</b> <sup>-3</sup>
CD, 83 µm	2,9	3000
CD, 117 μm	4,0	4100

Този метод понастоящем се използва за реални изследвания в нашата страна, като с негова помощ са идентифициран повишени концентрации на радон в редица частни и обществени сгради. В някои раиони, които са обект на изследване от дълго време с "класически" методи (дифузионни камери) се оказа възможно да се сравни пряко определената с диск ретроспективна концентрация с оценената от минали проспективни измервания. Такива резултати за с. Елешница са показани на Фиг. 22. Вижда се, че е налице много добра корелация.



**Фигура 22.** Сравнение между средни ретроспективно определени обемни активност на <sup>222</sup>Rn на база анализ на CD/DVD и чрез измервания с дифузионни камери, проведени в миналото.

Основната част от провежданите до момента измервания са в рискови райони и в гр. София. Ограничен брой измервания са също налице за гр. Варна, гр. Бургас и някои други населени места. Разпределението, показано на Фиг. 23 забележимо откроява рисковите райони (в случая гр. Бухово и с. Елешница) от населено място без забелязани особености по отношение на радона (гр. София).



**Фигура 23.** Ретроспективни обемни активности на <sup>222</sup>Rn измерени чрез CD/DVD в нормален район (гр. София) и в два рискови района (с. Елешница и гр. Бухово).

#### VII. Други приложения на поликарбонатния метод.

В тази глава са разгледани перспективни приложения на поликарбонатния метод, разработени главно в последните няколко години. Още с първите изследвания по поликарбонатния метод се появи въпросът, дали абсорбцията в поликарбонати не може да се използва за измервания на радон освен във въздух, така също и за други среди. Основен интерес в това отношение представляваха водите. Съдържанието на радон във води носи важна информация както в радиологично отношение, така също и за целите на геологията, сеизмологията и др. [39]. Първите наши експериментални резултати за измерване на радон във води чрез поликарбонати бяха публикувани през 2007 г. [40]. При тях бе изследвана корелацията между абсорбираната активност (измерена посредством излъченото бета или гама лъчение) в пластинка, експонирана (директно потопена) във водна среда и концентрацията на радон във водата. Още тези пилотни изследвания показаха, че методът позволява да се провеждат точни измервания, с чувствителност позволяваща да се постигнат референтните граници в Европейски нормативи, отнасящи се до радон във води [41]. За разкриването на пълния потенциал на метода за измервания с висока чувствителност бяха проведени допълнителни изследвания. При тях "сигналът" от абсорбирания в пластинката радон бе плътността на следите от алфа частици. При обработката (химично и електрохимично ецване, броене на следи) се използваше същата методология, която се прилага при стандартния поликарбонатен метод за въздух. Бяха проведени серия от експериментални изследвания при лабораторни условия, при които бе установена почти перфектна корелация между кумулативната концентрация на радон и сигнала (Фиг. 24). При това, за разлика от измерванията във въздух, тук влиянието на "външни източници" дори за сигнала на повърхността е пренебрежимо. Това позволява гъвкаво прилагане на метода с ецване на различни дълбочини, вкл. на повърхността на експонираната пластинка (теоретичният анализ [42] показа, че оптималната дълбочина е около 60 µm). Във всички случаи, постигнатата минимално определяема обемна активност е достатъчна, дори за измервания на фонови концентрации в околна среда (Таблица 7).



**Фигура 24.** Корелация на кумулативната обемна активност на  $^{222}$ Rn и сигнала на дълбочина на ецване 60  $\mu$ m.

**Таблица 7.** Граници на детектиране за <sup>222</sup>Rn във вода, определени чрез електрохимично ецване и броене на следи на различна дълбочина.

Depth (µm)	0	60	80
$MDAC (Bq L^{-1})$	0.069	0.058	0.073

В заключение трябва да отбележим, че с "трековата версия" на поликарбонатния метод за води успешно бе участвано в международно междулабороторно сравнение, организирано през 2009 г. в САЩ [43].

Друго перспективно приложение на абсорбцията в поликарбонати за измервания на радон бе предложено през 2009 г. от Tommasino et al. [44]. При него идеята е да се използва поликарбонатният абсорбер като "радиатор" на α-частици, които да бъдат регистрирани с външен спрямо абсорбера детектор на следи. Една възможна конфигурация, с която това се реализира е показана на Фиг. 25. Първите експериментални резултати бяха обещаващи [45], но изясняването на потенциала на този подход изискваше моделиране на процесите в този тип детектори. Забелязвайки, че вече разработеният от мен теоретичен модел за "класическия" поликарбонатен метод сравнително лесно може да бъде разширен в посока моделиране свойствата на тези детектори, през 2010 г. бяха предприети изследвания в тази насока.



Фигура 25. "Филмов радонов дозиметър" с използване на композитен абсорбер/радиатор (4 поликарбонатни фолия с дебелина 20 µm всяко) и детектор Kodak Pathe LR-115/II.

Геометрията на облъчване за този тип детектори е показана на Фиг. 26.

![](_page_38_Figure_0.jpeg)

Фигура 26. Геометрия на облъчване за детектор с външен абсорбер/радиатор.

В резултат на проведения математически анализ, отново съчетавайки профила на обемно разпределение на абсорбираната активност с функцията на отклик на използваните детектори, бе получен следният аналитичен изрез за  $CF_i$  ( $CF=CF_1+CF_2+CF_3$ ):

$$CF_{i} = \frac{1}{2} K \int_{0}^{\theta_{c} r_{2}(\theta)} \left( A \exp\left(-\frac{r\cos\theta}{L_{D}}\right) + B \exp\left(\frac{r\cos\theta}{L_{D}}\right) \right) \sin\theta\cos\theta d\theta dr = \frac{1}{2} K L_{D} J_{i}$$
(27)

където величините *J*<sub>i</sub> се задават със следните (числено пресмятани) интеграли:

$$J_{i} = \int_{0}^{\theta_{i}} \left( A \left( 1 - \exp\left( -\frac{R_{i} - R_{L}(\theta)}{L_{D}} \cos \theta \right) \right) + B \left( \exp\left( \frac{R_{i} - R_{L}(\theta)}{L_{D}} \cos \theta \right) - 1 \right) \right) \sin \theta d\theta +$$

$$+ \int_{\theta_{i}}^{\theta_{i}} A \left( \exp\left( -\frac{R_{i} - R_{U}}{L_{D}} \cos \theta \right) - \exp\left( -\frac{R_{i} - R_{L}}{L_{D}} \cos \theta \right) \right) \sin \theta d\theta +$$

$$+ \int_{\theta_{i}}^{\theta_{i}} B \left( \exp\left( \frac{R_{i} - R_{L}}{L_{D}} \cos \theta \right) - \exp\left( \frac{R_{i} - R_{U}}{L_{D}} \cos \theta \right) \right) \sin \theta d\theta$$

$$(28)$$

Предложените нов фид "филмови" радонови дозиметри имат предимството да са компактни (с размери например на паспортна снимка). Те могат лесно да се поставят навсякъде в често използвани предмети, вкл. в касети на индивидуални дозиметри за външно облъчване, например. Това позволява разнообразни технически приложения – например конструиране на "комбинирани" индивидуални дозиметри за външно облъчване и радон. За да се изяснят тези възможности, а така също да се сравнят експерименталните резултати с моделнотеоретичните оценки през 2011 г. бяха организирани експериментални изследвания [46]. Филм (абсорбер + детектор) бе поставен в различни обекти, показани на Фиг. 27.

![](_page_39_Picture_1.jpeg)

![](_page_39_Picture_2.jpeg)

Фигура 27. "Филмови радонови дозиметри", поставени в различни обекти.

Тези обекти бяха едновременно експенирани при референтни нива на радон. Целта бе да се установи дали има разлики между сигнала от филми, монтирани в различни обекти (теоретичната прогноза бе, че такива не могат да се очакват). Резултатите са показани на Фиг. 28. Вижда се, че в действителност обектът, в който "радоновият филм" е поставен не оказва влияние. Сравнението между експериментално определените СF и теоретичните оценки показа, че те съвпадат в рамките на 10%. Интересното е, че тези 10% се оказват систематична разлика, което навежда на мисълта, че евентуална причина може да е неточност във входящите величини, използвани в теоретичния модел.

![](_page_40_Figure_1.jpeg)

**Фигура 28.** Отклик на детектор с абсорбери от един и същ материал (Makrofol DE). (A) с 250 µm монолитен абсорбер, (B) с композитен абсорбер.

Последните изследвания, свързани с поликарбонатния метод се отнасят до възможността CD/DVD да бъдат използвани освен като ретроспективни детектори на радон, така и за ретроспективни измервания на торон. Тези изследвания бяха провокирани от нарастналия през последните години интерес към торона. Това се обуславя от една страна от свързаното с него облъчване в сгради, което в някои случаи не е пренебрежимо [47], а от друга от факта, че голяма част от масово използваните детектори на радон показват чувствителност в резултата, което внася неконтролируемо систематично отклонение [48]. На посветената на торона конференция в Chiba, Japan, проведена на 19-22. 05. 2010 г. липсата на методи за ретроспективни измервания на торон е отчетена, като на проведената международна кръгла маса е заявен интерес, предложеният от автора CD/DVD метод да бъде разширен и за ретроспективни измервания на торон [49]. В резултат на това "предизвикателство" от автора бяха проведени първоначално моделнотеоретични изследвания [50].

Идеята на метода за торон е следната: За разлика от абсорбирания радон, източникът свързан с торон е разпределен в тънък повърхностен слой (от порядъка на микрон) на диска. Причината е, че поради късия си период на полуразпадане <sup>220</sup>Rn не може да проникне на по-голяма дълбочина. Като повърхностен източник следва да разглеждаме и отложените по повърхността на диска атоми на дъщерните продукти на <sup>220</sup>Rn. Налице е дълбочинен интервал (64 – 76 µm) до който достигат  $\alpha$ -частиците на <sup>212</sup>Ро (8,78 MeV) от източник на повърхността, но не и тези от други намиращи се на повърхността нуклиди. Изотопът <sup>212</sup>Ро е продукт на разпадане на <sup>220</sup>Rn. Следи от алфа частици обаче в горепосочения дълбочинен интервал могат да се дължат и на абсорбирания <sup>222</sup>Rn, т. е. налице е комбиниран "радон + торон" сигнал. За да се оцени "радоновата компонента" се определя сигналът и на още една дълбочина (> 76 µm), където той е свързан само с абсорбирания радон. Използвайки този сигнал, както и разработения теоретичен модел за разпределението на радоновия сигнал в дълбочина, става възможно да се оцени "радоновата компонента" в смесения сигнал. След нейното изваждане, това което остава е чистата "торонова компонента". Концепцията е илюстрирана на Фиг. 29.

![](_page_41_Figure_2.jpeg)

Фигура 29. Дълбочини, в които могат да се формират трекове от различни източници. Над 76 µm трековете са свързани само с абсорбирания <sup>222</sup>Rn, в интервала 64 – 76 µm към тях се добавят и тези от <sup>212</sup>Po. При по-малки дълбочини картината е сложна.

За проверка на идеята бяхя проведени пилотни експерименти при референтни нива на торон [51]. Експонирани бяха еднакви дискове (DVD Verbatim) поставени в различни опаковки. Трябва да отбележим, че тъй като тороновия сигнал се дължи и на отложени по повърхността на диска разпадни продукти на торона, може да се очаква влиянието на опаковката в този случай да е голямо. Така се и оказва на практика. Както се вижда на Фиг. 30, индивидуалните вариации са значителни. За постигането на относително по-точни ретроспективни измервания на торон ще е необходимо индивидуално *а posteriori* калибриране на всеки анализиран диск, при това поставен в същата опаковка, в която е съхраняван.

![](_page_42_Figure_1.jpeg)

**Фигура 30.** Експериментални резултати, получени с еднакви DVD (Verbatim), но поставени в различни опаковки. По отношение на  $^{220}$ Rn (и за разлика от  $^{222}$ Rn) опаковката оказва съществено влияние.

Освен лабораторни, бяха направени и ограничен брой реални ретроспективни измервания на радон в сгради, в рамките на международно сътрудничество. Интересно е, че при тях бяха идентифицирани две сгради с високи концентрации на торон и нормални такива на радон.

#### VIII. Заключение

В дисертацията са отразени изследвания на автора в следните направления:

- Методични изследвания върху кумулативни измервания на радон посредством дифузионни камери с твърдотелни детектори на следи. Описана е процедурата, с която е осъществена проследимост на използваните в практиката дифузионни камери до първичен радонов стандарт. Изследвано е разпределението на дъщерните продукти на радона в обема на цилиндрична дифузионна камера и са получени аналитични изрази, които го описват. Направено е сравнение с експериментални резултати.
- Разработен е обобщен математически алгоритъм за обработка на дискретни измервания на дъщерни продукти на <sup>222</sup>Rn и <sup>220</sup>Rn (както

спектрометрични, така и неспектрометрични). Разгледани са приложения за филтърни методи с общо алфа броене.

- Предложен е способ за изготвяне на късоживущи α-източници с енергии 6,0 MeV и 7,69 MeV, които могат да се използват за калибриране на детектори.
- Предложен е метод за кумулативни измервания на индивидуалните концентрации на късоживущите разпадни продукти на <sup>222</sup>Rn (<sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi + <sup>214</sup>Po) както и тези на <sup>220</sup>Rn (<sup>212</sup>Pb, <sup>212</sup>Bi + <sup>212</sup>Po/<sup>208</sup>Tl), подходящ за измервания в сгради и околна среда. Разработен е общ математически алгоритъм за обработка на измерванията. Представени са резултати от лабораторни и полеви измервания.
- Оценено е осредненото облъчване от дъщерни продукти на радона по работните места на всички главни уранови рудници в страната, както и за металните рудници от група "Росен" към Бургаски медни мини. Резултатите са използвани в биомедицинси изследвания, довели до установяване на корелация между облъчването и честота на бронхиална дисплазия сред подземните миньори.
- Проведени са изследвания в известни рискови райони и е идентифициран нов такъв (град Раковски). Показано е, че радонът може да се разглежда като потенциален причинител на повишената честота на белодробен рак в гр. Раковски.
- Предложен е метод за кумулативни измервания на радон на база на използване на високата абсорбционна спасабност на поликарбонати на основата на бисфенол-А. Проведени са експериментални изследвания за възможностите на метода. Разработен е теоретичен модел на процесите на сорбция и десорбция и на формиране на сигнал в поликарбонатни детектори. Разработени са версии на метода, подходящи за измервания във въздух, вода и почвен газ.
- На базата на поликарбонатния метод е предложен метод за ретроспективни измервания на радон чрез използване на съхранявани в сгради CD/DVD. Разработени са процедури за калибриране (вкл. а posteriori калибриране) и температурна корекция. Проведени са лабораторни изследвания и реални измервания, вкл. такива довели до идентифициране на рискови сгради.
- Проведено е теоретично и експериментално изследване на радонови филмови дозиметри, използващи поликарбонатни абсорбери, куплирани с външни детектори на следи. Показана е възможността да се използват различни конструкции такива дозиметри.
- Предложен е метод за ретроспективни измервания на торон (<sup>220</sup>Rn) на база на използване на CD/DVD. Направено е моделно-теоретично изследване на метода и пилотни експериментални изследвания.

# Научни приноси, защитавани от автора на дисертацията:

## I. Приноси от методичен характер:

- 1. Предложен е оригинален метод за кумулативни измервания на радон посредством абсорбция в поликарбонати. Експериментално е показано, че методът е приложим за количествени измервания на <sup>222</sup>Rn във въздушна и водна среда.
- 2. Разработен е теоретичен модел на процесите на сорбция и десорбция на радон в поликарбонати. Установено е съответствие между теоретични зависимости и експериментални резултати.
- 3. На база на поликарбонатния метод е предложен оригинален метод за ретроспективни измервания на <sup>222</sup>Rn посредством анализ на CD/DVD. Разработени са процедури за калибриране и за температурна корекция. Показано е експериментално, че методът е с потенциал за точни ретроспективни измервания.
- 4. Предложен е теоретичен модел на формиране на следи от алфа частици в поликарбонати, в които е абсорбиран <sup>222</sup>Rn и продуктите му на разпадане. Направено е сравнение на теоретичните оценки за калибровъчния фактор с експерименталните стойности и е установено съвпадение в рамките на 10%.
- 5. На база на CD/DVD метода за  $^{222}$ Rn е предложен оригинален метод за измерване на торон ( $^{220}$ Rn), съвместно с  $^{222}$ Rn. Проведени са моделнотеоретични и пилотни експериментални изследвания.
- 6. Предложен е теоретичен модел, описващ формирането на сигнал във "филмовите дозиметри на радон", предложени от Tommasino et al. Проведени са експериментални изследвания и е установено съвпадение между теоретични и експериментални стойности на калибровъчния фактор в рамките на 10%.
- 7. Предложен е оригинален метод за кумулативни измервания на индивидуалните концентрации на  $^{218}$ Po,  $^{214}$ Pb,  $^{214}$ Bi +  $^{214}$ Po, както и на  $^{212}$ Pb,  $^{212}$ Bi +  $^{212}$ Po, който е приложим за измервания в сгради и околна среда. Предложен е теоретичен алгоритъм за обработка на измерванията. Проведени са измервания в лабораторни условия, както и в жилищни и обществени сгради и открит атмосферен въздух. С цел калибриране на използваните детектори е предложена методология за изготвяне на късоживущи  $\alpha$ -източници с енергии 6,0 MeV и 7,69 MeV, чиято емисия да може да се определи с достатъчна за целите на калибриране на детектори точност.
- 8. Получени са аналитични изрази, описващи разпределението на атомите на <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi + <sup>214</sup>Po във вътрешния обем и по стените на цилиндрична дифузионна камера за кумулативни измервания на <sup>222</sup>Rn.

## **II. Приноси от приложен характер:**

- 1. Обобщени са резултатите от провеждания радиационен мониторинг в български уранови и метални рудници и е определено средното облъчване по работните места, по години, за главните подземни рудници от урановата промишленост, както и за рудниците от групата "Росен" към Бургаски медни мини.
- 2. На база на тези оценки е изследвана и установена корелация между честотата на бронхиална дисплазия при подземните миньори и полученото от тях кумулативно облъчване от дъщерни продукти на <sup>222</sup>Rn.
- 3. Изяснен е средният денонощният ход и разпределението на концентрациите на радон в открит атмосферен въздух в с. Елешница, Разложко. На база на кумулативни измервания е изяснено разпределението на средногодишните концентрации на радон в сгради в с. Елешница.
- 4. За пръв път е идентифициран радонов проблем в гр. Раковски. На база на кумулативни измервания е изяснено разпределението на средногодишните концентрации на радон в сгради. Показано е, че облъчването от радон може да се разглежда като вероятна причина за значимо повишената честота на белодробен рак в този град.
- 5. Идентифицирани са жилищни и обществени сгради с високи нива на радон. С водещото участие на автора са предприети противорадонови технически мерки в една частна и десет обществени сгради, довели до снижаване на концентрациите на радон и свързания здравен риск.

## Публикации на автора, включени в дисертацията:

#### В международни списания, индексирани с IF

- 1. Pressyanov D. (2012) Retrospective measurements of thoron and radon by CDs/DVDs: a model approach. *Radiat. Prot. Dosim.* 149, p. 141.
- Pressyanov D., Georgiev S., Dimitrova I., Mitev K. (2012) Experimental study of the response of radon track detectors with sold absorbers as radiators. <u>*Radiat.*</u> <u>Meas.</u> (in press).
- **3.** Pressyanov D., Dimitrova I., Georgiev S., Mitev K. (2012) Pilot experiments on retrospective thoron measurements by CDs/DVDs. *Radiat. Meas.* (in press).
- 4. Pressyanov D. (2011) Modeling response of radon track detectors with solid absorbers as radiators. *Radiat. Meas.* 46, p. 357.
- 5. Pressyanov D., Georgiev S., Dimitrova I., Mitev K., Boshkova T. (2011) Determination of the diffusion coefficient and solubility of radon in plastics. *Radiat. Prot. Dosim.* 145, p. 123.
- Dimitrova I., Pressyanov D., Georgiev S., Yankov P. (2011) Logistic of surveys of retrospective radon concentrations by home stored CDs/DVDs. <u>*Radiat.*</u> <u>*Prot. Dosim.*</u> 145, p. 300.
- Pressyanov D., Mitev K., Georgiev S., Dimitrova I. (2011) Solubility of krypton, xenon and radon in polycarbonates. Application for measurement of their radioactive isotopes. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* A 629, p. 323.
- 8. Pressyanov D. (2010) Radon research and practice in Bulgaria-from retrospective measurements to mitigation. *Nukleonika* 55, p. 477.
- **9.** Dimitrova I., Mitev K., Pressyanov D., Georgiev S., Boshkova T. (2010) Measurement of <sup>222</sup>Rn and <sup>226</sup>Ra in water by absorption of radon in polycarbonates and etching alpha-tracks. *Radiat. Meas.* **46**, **p. 119**.
- Pressyanov D., Mitev K., Georgiev S., Dimitrova I. (2010) Radon mapping by retrospective measurements – an approach based on CDs/DVDs. <u>J. Envir.</u> <u>Radioact.</u> 101, p. 821.
- Pressyanov D., Mitev K., Georgiev S., Dimitrova I. (2009) Sorption and desorption of radioactive noble gases in polycarbonates. <u>Nucl. Instrum. Methods</u> <u>Phys. Res.</u> A 598, p. 620.

- 12. Pressyanov D. (2009) Modeling a <sup>222</sup>Rn measurement technique based on absorption in polycarbonates and track-etch counting. *Health Phys.* 97, p. 604.
- 13. Pressyanov D. (2008) Radon progeny distribution in cylindrical diffusion chambers. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* A 596, p. 246.
- 14. Pressyanov D., Dimitrova I., Georgiev S., Hristova E., Mitev K. (2007) Measurement of radon-222 in water by absorption in Makrofol. <u>Nucl. Instrum.</u> <u>Methods Phys. Res.</u> A 574, p. 202.
- 15. Tsankov L., Pressyanov D., Mitev K., Georgiev S., Dimitrova I. (2005) Automatic counting of chemically etched tracks by means of a computer scanner. <u>*Radiat. Meas.*</u> 39, p. 557.
- 16. Pressyanov D., Buysse J., Poffijn A., Van Deynse A., Meesen G. (2004) Integrated measurements of <sup>222</sup>Rn by absorption in Makrofol. <u>Nucl. Instrum.</u> <u>Methods. Phys. Res</u>. A 516, p. 203.
- Pressyanov D., Buysse J., Poffijn A., Meesen G., Van Deynse A. (2003) The compact disk as radon detector-a laboratory study of the method. <u>*Health Phys.*</u> 84, p. 642.
- Pressyanov D. (2002) Short solution of the radioactive decay chain equations. <u>Am. J. Phys.</u> 70, p. 444.
- Pressyanov D., Buysse J., Van Deynse A., Poffijn A., Meesen G. (2001) Indoor radon detected by compact discs. *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res.* A 457, p. 665.
- 20. Pressyanov D., Poffijn A., Meesen G., Van Deynse A., Buysse J. (2001) Shortlived alpha sources of energies 6.0 MeV and 7.69 MeV for calibration purposes. <u>*Radiat. Prot. Dosim.*</u> 94, p. 281.
- Picolo J. L., Pressyanov D., Blanchis P., Michielsen N., Grassin D., Voisin V., Turek K. (2000) A radon-222 metrological chain from primary standard to field detectors. *Appl. Radiat. & Isot.* 52, p. 427.
- 22. Pressyanov D., Buysse J., Poffijn A., Meesen G., Van Deynse A. (2000) Polycarbonates: a long-term highly sensitive radon monitor. <u>Nucl. Instrum.</u> <u>Methods. Phys. Res.</u> A 447, p. 619.
- 23. Pressyanov D., Minev L., Uzunov P., Danon S., Valerianova Z. (1999) Excess lung cancer incidence and radon indoors in a Bulgarian town. <u>J. Epid. & Commun. Health</u> 53, p. 448.

- Pressyanov D., Rusinov I., Simeonov G. (1999) Radon progeny deposition in track-detection diffusion chambers. <u>Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res.</u> A 435, p. 509.
- 25. Pressyanov D. S. (1997) Integrated measurements of <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb and <sup>214</sup>Bi+<sup>214</sup>Po in air under environmental concentrations <u>Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res.</u> A 397, p. 448.
- 26. Pressyanov D. S. (1997) Integrated measurements of <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb and <sup>214</sup>Bi+<sup>214</sup>Po in air under environmental concentrations mathematical supplement <u>Nucl.</u> <u>Instrum. Methods. Phys. Res.</u> A 397, p. 455.
- 27. Popov P. C., Pressyanov D. S. (1997) Track density assessment by obstructed total internal reflection of a laser beam. *Radiat. Meas.* 27, p. 27.
- **28.** Pressyanov D. S., Guelev M. G., Pentchev O. J., Kritidis P. P. (1996) Statistical precision of integrated measurements of <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn decay products in the air by a rotating filter device. *Environ. Int.* **22**, **p. S607**.
- 29. Pressyanov D. S., Guelev M. G., Klein D., Kritidis P. P. (1996) Measurement of <sup>222</sup>Rn in soil gas by combination of thermoluminescent and solid-state nuclear track detectors. *Environ. Int.* 22, p. S491.
- **30. Pressyanov D. S.** (1995) Integrated measurements of <sup>212</sup>Pb and <sup>212</sup>Bi in the air by rotating filters. *Health Phys.* 68, p. 261.
- 31. Michaylov M. A., Pressyanov D. S., Kalinov K. B. (1995) Bronchial dysplasia induced by radiation in miners exposed to <sup>222</sup>Rn progeny. <u>Occup. & Envir.</u> <u>Medicine</u> 52, p. 82.
- 32. Pressyanov D. S., Guelev M. G., Sharkov B. G. (1995) Radon and radon progeny outdoors in a valley with enhanced natural radioactivity. <u>Atmos.</u> <u>Environment</u> 29, p. 3433.

### В книги и монография

- 33. Pressyanov D. (2012) Radon and Radon Progeny: Methodological Points and Case Studies. Lambert Academic Publishing GmbH & Co. KG, Saarbruecken, Germany. ISBN: 978-3-8484-8604-5 (monograph, 136 pages).
- 34. Pressyanov D., Dimitrova I., Mitev K., Georgiev S. (2012) Retrospective radon measurements: techniques and perspectives. Chapter 4 IN: Handbook on Radon: Properties, Measurements and Health Effects. Nova Science Publishers, Inc., New York, ISBN: 978-1-62100-369-4, pp. 101-129.

35. Pressyanov D. (2010) Nuclear tracks in polycarbonates with high radon absorption ability: Opportunities for measuring <sup>222</sup>Rn. Chapter 4 IN: Nuclear Track Detectors: Design, Methods and Applications. Nova Science Publishers, Inc., New York, ISBN: 978-1-60876-826-4, pp. 155-176.

### В списания, неиндексирани с IF

- **36. Пресиянов Д., Данон Ш., Валерианова З.** (2000) Концентрации на <sup>222</sup>Rn в жилища в гр. Раковски и потенциалният им принос за повишената заболеваемост от белодробен рак. *<u>Рентгенология и радиология</u> XXXIX, р. 209.*
- 37. Пресиянов Д. Радоновият проблем. Наука XXI(4) (2011) 16-20.
- 38. Georgiev S., Pressyanov D., Mitev K., Dimitrova I. (2008) Calibration of Diffusion Chambers for Measuring <sup>222</sup>Rn in Air. <u>BgNS Trans.</u> 12(1), p.3.
- **39. Dimitrova I., Mitev K., Pressyanov D., Georgiev S.** (2008) Desorption of <sup>222</sup>Rn from Polycarbonate Samples. *BgNS Trans.* 12(1), **p.33**.
- **40. Пресиянов** Д. (2004) Облъчването от радон в жилищата-състояние на проблема. *Минно дело и геология* LIX (6), с. 31.
- **41.** Димитров М., Пресиянов Д. (1997) Вътрешно облъчване от дъщерни продукти на <sup>222</sup>Rn на подземните работници от български уранови рудници за периода 1958-1989. <u>Докл. БЯД</u> **3 (1), с. 44.**
- **42. Пресиянов Д., Димитров М.** (1997) Вътрешно облъчване от дъщерни продукти на <sup>222</sup>Rn на подземните работници от Бургаски медни мини за периода 1962-1990. <u>Докл. БЯД</u> **3 (1), с. 39.**

### В сборници с материали от конференции

- **43. Pressyanov D.** (2007) The compact disk as a retrospective radon detector performance of the method. *Proc.* 17<sup>th</sup> AARST International Radon Symposium, Jacksonville, Florida, 9-12.09.2007.
- 44. Pressyanov D., Dimitrova I., Georgiev S., Mitev K. (2008) Measurement of <sup>222</sup>Rn by absorption in polycarbonates – research and practice. *Proc.* 18<sup>th</sup> AARST *International Radon Symposium*, Las Vegas NV, 14-17 September 2008.
- 45. Димитрова И., Георгиев С., Митев К., Пресиянов Д. (2009) Калибриране на компакт дискове за измервания на радон-222 във въздух. *В сб. XIX-ти*

национален научен симпозиум с международно участие "Метрология и метрологично осигуряване '2009", Созопол, с. 347.

- 46. Георгиев С., Димитрова И., Пресиянов Д., Митев К. (2009) Измервания на радон-222 в жилища и в почвен газ с поликарбонатен метод. В сб. XIXти национален научен симпозиум с международно участие "Метрология и метрологично осигуряване '2009", Созопол, с. 341.
- 47. Pressyanov D., Dimitrova I., Georgiev S., Mitev K. Radon survey based on home stored CDs/DVDs. Proc. 3<sup>rd</sup> European IRPA Congress, 14-18 June 2010, Helsinki, Finland.
- **48. Пресиянов** Д. Радоновият проблем предизвикателство и за физиката. Сб. *XXXIX нац. конф. по въпросите на обучението по физика "Атомната и ядрената физика в образованието"*, София, 7 – 10 април 2011, стр. 40-46.
- 49. Георгиев С., Митев К., Пресиянов Д., Герганов Г., Димитрова И. Компютърен код за прецизно пресмятане на активността и дълбочинното разпределение на радиоактивни благородни газове абсорбирани в поликарбонати. Сб. XXI национален научен симпозиум с международно участие "Метрология и метрологично осигуряване 2011" - Созопол 10-14.09.2011, сс. 278-283.
- 50. Vapirev E., Dimitrov M., Minev L., Boshkova T., Pressyanov D., Guelev M. (1993) Radioactive sites in Bulgaria contaminated with radium and uranium. *Proc. CEC Int. Symp. on remediation and restoration of radioactivecontaminated sites in Europe.* Antwerpen, 11-15 Oct. 1993, Doc. XI-5027/94, p. 929.
- 51. Vapirev E., Dimitrov M., Minev L., Boshkova T., Pressyanov D., Guelev M. (1996) Radioactively contaminated sites in Bulgaria. Proc. IAEA first workshop on Environmental restoration for Central and Eastern Europe. <u>IAEA-TECDOC-865</u>, vol. 1, p. 43.
- 52. Pressyanov D., Van Deynse A., Buysse J., Poffijn A., Meesen G. (1999) Polycarbonates: a new retrospective radon monitor. *Proc. Conf. IRPA'99, Budapest, 23-27 August 1999, p. 716.*
- **53.** Pressyanov D., Danon Sh., Valerianova Z. (2002) Radon indoors in a Bulgarian town with increased lung cancer incidence. IN: Stakeholders' Conf. on Approaches to the Management of Environmental Radioactivity. Luxembourg 2-3. 12. 2002, p. 169.

### Библиография

- 1. World Health Organization. WHO Handbook on indoor radon: a public health perspective. Geneva (2009).
- 2. Krewski D. et al. Residential radon and risk of lung cancer: a combined analysis of 7 North American case-control studies. *Epidemiology* 16 (2005) 137-145.
- 3. Darbi S. et al. Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies. *Br. Med. J.* 330 (2005) 223-227.
- 4. Bale W. F. Hazards associated with radon and thoron. Unpublished memorandum to the US-AEC, March 14, 1951, reprinted in *Health Phys.* 38 (1980) 1062-1066.
- 5. Young D. A. Etching of radiation damage in lithium fluoride. *Nature* 182 (1958) 375-377.
- 6. Fleischer RL, Price PB and Walker RM. Solid state detectors: Applications to nuclear science and geophysics. *Ann. Rev. Nucl. Sci.* 15 (1965) 1-28
- 7. Nikolaev V. A., Ilic R. Etched track radiometers in radon measurements: A review. *Radiat. Meas.* 30 (1999) 1-13.
- 8. Pressyanov D. Radon and radon progeny: Methodological points and case studies. Lambert Academic Publishing, Saarbruecken (2012), ISBN: 978-3-8484-8604-5.
- 9. Popov P. and Pressyanov D. Track density assessment by obstructed total internal reflection of a laser beam. *Radiat. Meas.* 27 (1997) 27-30.
- Tsankov L., Pressyanov D., Mitev K., Georgiev S., Dimitrova I. Automatic counting of chemically etched tracks by means of computer scanner. *Radiat. Meas.* 39 (2005) 557-559.
- 11. Picolo J.L. et al. A radon 222 traceability chain from primary standard to field detectors. *Appl. Radiat. Isot.* 52 (2000) 427-434.
- 12. Nikezic D., Yu K.N. Formation and growth of tracks in nuclear track materials. *Mater. Sci. Eng.* R 46 (2004) 51-123.
- 13. Pressyanov D., Rusinov I., Simeonov G. Radon progeny deposition in trackdetection diffusion chambers. *Nucl. Instrum. Meth.* A 435 (1999) 509-513.
- 14. Pressyanov D. Radon progeny distribution in cylindrical diffusion chambers. *Nucl. Instrum. Meth.* A 596 (2008) 446-450.
- 15. Пресиянов Д. Кумулативни измервания на дъщерни продукти на <sup>222</sup>Rn и на външното бета облъчване от <sup>234m</sup>Pa. Дисертация за научната степен кфн. Физически факултет, СУ, 1993.
- 16. Bateman H. Solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformation. *Proc. Cambridge Philos. Soc.* 15 (1910) 423-427.
- Pressyanov D. Short solution of the radioactive decay chain equations. *Am. J. Phys.* 70 (2002) 444-445.
- Pressyanov D., Poffijn A., Meesen G., Van Deynse A., Buysse J. Short-lived alpha sources of energies 6.0 MeV and 7.69 MeV for calibration purposes. *Radiat. Prot. Dosim.* 94 (2001) 281-285.

- 19. Kritidis P., Uzunov I., Minev L. Precision alpha-counting methods for determination of radon daughters in air. *Nucl. Instrum. Meth.* 143 (1977) 299-305.
- 20. Penchev P. Contribution to the methods for quantitative determination of radium and some spring waters in Bulgaria. *J. Bulg. Acad. Sci., Nat. Sci.* IX (1914) 1-44 /in Bulgarian/.
- 21. Uzunov I., Dimitrov M., Steinhausler F. Environmental radiation levels and occupational exposure due to uranium mining and milling operations in Bulgaria. *Radiat. Prot. Dosim.* 45 (1992) 141-143.
- Michaylov M., Pressyanov D., Kalinov K. Bronchial dysplasia induced by radiation in miners exposed to <sup>222</sup>Rn progeny. *Occup. Env. Med.* 52 (1995) 82-85.
- 23. Pressyanov D, Minev L, Uzunov P, Danon S, Valerianova Z. Excess lung cancer incidence and radon indoors in a Bulgarian town. *J. Epid. Commun. Health* 53 (1999) 448.
- 24. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. **Sources and Effects of Ionizing Radiation.** UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. UNSCEAR, U.N., N.Y. (2000).
- 25. American Association of Radon Scientists and Technologists. Active soil depressurization radon mitigation standards for low rise residential buildings. AARST, Fletcher, NC (2006).
- 26. Наредба за основните норми за радиационна защита. Държ. в-к бр. 76/5.10.2012 г.
- Pressyanov D, Van Deynse A, Buysse J, Poffijn A, Meesen G.
   Polycarbonates: a new retrospective radon monitor. Proceedings of IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe, Budapest, 23-27 August 1999: 716-722.
- Mitev K., Madzhunkov Y., Gerganov G., Dimitrova, I. Georgiev S. & Pressyanov D. Automatic Counting of Electrochemically Etched Tracks in Compact discs. Application to Retrospective Measurements of Rn-222. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 57 (2010) 300-308.
- 29. Pressyanov D., Mitev K., Georgiev S., Dimitrova I. Sorption and desorption of radioactive noble gases in polycarbonates. *Nucl. Instrum Meth.* A 598 (2009) 620-627.
- 30. Pressyanov D., Georgiev S., Dimitrova I., Mitev K., Boshkova T. *Determination of the diffusion coefficient and solubility of radon in plastics. Radiat. Prot. Dosim.* 145 (2011) 123-126.
- 31. Rovenska K., Jiranek M. 1<sup>st</sup> international comparison measurement on assessing the diffusion coefficient of radon. *Radiat. Prot. Dosim.* 145 (2011) 127-132.
- 32. Pressyanov D. Modeling a <sup>222</sup>Rn measurement technique based on absorption in polycarbonates and track-etch counting. *Health Phys.* 97 (2009) 604-612.
- 33. Vancraeynest G, Franchoo S, Huyse M, Moons R. Optimisation and modeling of electrochemically etched polycarbonate track detectors. *Nucl Instrum Methods* B 129 (1997) 65-72.

- 34. Vanmarcke H, Janssens A. Study of the properties of electrochemically etched  $\alpha$ -tracks in a polycarbonate foil used in a radon diffusion chamber. *Nucl Tracks* 12 (1986) 689-692.
- 35. De Vos K. Ontwikkeling van een retro- en prospectieve radondetector gebaseerd op de radonabsorptie in polycarbonaten. Diploma thesis, University of Ghent; 2000 (in Dutch).
- Tomasek L., Darby S.C., Fearn T., Swerdlow A. J., Placek V. & Kunz E. Patterns of Lung Cancer Mortality among Uranium Miners in West Bohemia with Varying Rates of Exposure to Radon and its Progeny. *Radiat. Res.* 137 (1994) 251-261.
- 37. Lubin JH, Boice JD, Samet JM. Errors in exposure assessment, statistical power and the interpretation of residential radon studies. *Radiat. Res.* 144 (1995) 329-341.
- Pressyanov D., Buysse J., Poffijn A., Meesen G., Van Deynse A. The compact disk as radon detector – a laboratory study of the method. *Health Phys.* 84 (2003) 642-651.
- 39. Yurong Y., Ziqiang Z. Nucl. Tracks Radiat. Meas. 22 (1993) 499.
- 40. Pressyanov D., Dimitrova I., Georgiev S., Hristova E., Mitev K. Measurement of radon-222 in water by absorption in Makrofol. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* A 574 (2007) 202-204.
- 41. Commission of the European Communities (2001). 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), OJ L 344, 28.12.2001, 85.
- 42. Dimitrova I., Mitev K., Pressyanov D., Georgiev S., Boshkova T. Measurement of <sup>222</sup>Rn and <sup>226</sup>Ra in water by absorption of radon in polycarbonates and etching alpha-tracks. *Radiat. Meas.* 46 (2010) 119-127.
- 43. Kitto M. E., Bari A., Haines D. K., Menia T. A., Fielman E. M. Laboratory intercomparison of radon-in-water standards. IN: Proc. 2009 Int. AARST Radon Symp., pp. 90-96, St. Luis, MO.
- 44. Tommasino L., Tommasino M. C., Viola P. Radon-film-badges by solid radiators to complement track detector-based radon monitors. *Radiat. Meas.* 44 (2009) 719-723.
- 45. Tommasino L. Radon film-badges versus existing passive monitors based on track etch detectors. *Nukleonika* 55 (2010) 549-553.
- 46. Pressyanov D., Georgiev S., Dimitrova I., Mitev K. Experimental study of the response of radon track detectors with solid absorbers as radiators. *Radiat. Meas.* (2012), in press.
- 47. Cheng J., Moir D. The concept of equivalent radon concentration for practical consideration of indoor exposure to thoron. *Int. J. Environ. Res. Public Health* 9 (2012) 286-293.
- 48. Tokonami, S. Why is <sup>220</sup>Rn (thoron) measurement important? *Radiat. Prot. Dosim.* 141 (2010) 335-339.
- 49. Akiba S., Tokonami S., Bochicchio F., McLaughlin J., Tommasino L. & Harley N. Thoron: its metrology, health effects and implications for radon

epidemiology: a summary of roundtable discussion. *Radiat. Prot. Dosim.* 141 (2010) 477-481.

- 50. Pressyanov D. Retrospective measurements of thoron and radon by CDs/DVDs: a model approach. *Radiat. Prot. Dosim.* 149 (2012) 464-468.
- 51. Pressyanov D., Dimitrova I., Georgiev S., Mitev K. Pilot experiments on retrospective thoron measurements by CDs/DVDs. *Radiat. Meas.* (2012), in press.

#### Благодарности

Голяма част от изследванията отразени в дисертацията са подпомогнати финансово от Националния фонд "Научни изследвания" към МОМН (проект ВУФ 08/05), Националния иновационен фонд (проект ИФ-02-18/24.10.2005), Агенция за ядрено регулиране (Договори 159-96, 214-98 и 44-00-37/2.12.2003), фонд "Научни изследвания" при СУ "Св. Климент Охридски" (общо 7 проекта), както и от Университета в Гент, Белгия (чрез двустранен договор с НИС-СУ от 13.09.2002 г.). Авторът е благодарен на Университета в Гент, Белгия и на Комисариата по атомна енергия на Франция за възможността да работи като гост-изследовател в техни научни лаборатории.

Пълният списък на колеги, които са споделяли време, знания и усилия при провеждането на изследванията е твърде дълъг, за да мога да ги изброя поименно без риск да пропусна някои от тях. Има имена обаче, които не мога да не посоча: На първо място това е Jozef Buysse, чиито ентусиазъм, прецизност и надеждност в лабораторната работа позволиха в относително кратък срок да бъдат успешно проведени първите пионерски изследвания по поликарбонатния метод. Благодарен съм на Таня Бошкова, за това че през всичките над две десетилетия съвместна работа не се умори да ме изслушва и съчетавайки критичен поглед с подкрепяща преценка помагаше, когато това бе възможно, увереността ми да победи съмненията. Благодарен съм на гл. ас. д-р Красимир Митев, ас. д-р Ивелина Димитрова и д-р Страхил Георгиев за творческото им участие в научните изследвания и особено в тези посветени на поликарбонатния метод. Без тях пътят за развитие и практическо приложение на този метод би бил много по-дълъг и труден. Благодарен съм на Петко Узунов, за помощта и ценните съвети при справяне с много "дребни" проблеми от ежедневието, с които е осеян пътят на научното (а и не само научното) развитие.