

Софийски университет “Св. Климент Охридски”  
Физически факултет

## ДИСЕРТАЦИЯ

за придобиване на научната и образователна степен доктор

Научна специалност: 01.03.04 Ядрена физика

Ивелина Стоянова Димитрова

---

Измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във въздушна и водна  
среда чрез абсорбция в поликарбонати

---

Научен ръководител: доц. д-р Добромир Пресиянов

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

София

2011

Настоящата дисертация е почти изцяло посветена на изследване и разработване на методи за измерване на  $^{222}\text{Rn}$ . Причината за това е в следните научно доказани факти:

- Радон-222 е най-сериозният по тежест отделен радиологичен фактор за населението и е отговорен за близо 50 % от средната ефективна доза, дължаща се на естествени източници [1];
- Радон-222 е вторият по важност причинител на белодробен рак след тютюнопушенето, а за хора, които никога не са пушили, е причинител номер едно [2].

Тези изчистени формулировки са от най-често повтаряните в научните текстове, посветени на радона. Без наличие на допълнителна информация тежестта на проблема остава скрита в тях. Затова с риск да изляза от твърдата почва на „научно доказаното“ и екстраполирайки да нагазя в мочурището на спекулациите, ще си позволя да „преведа“ горните твърдения. На статистически език те означават, че годишно само в България няколко стотин души умират вследствие на облъчване от радон<sup>1</sup>. Това число не е много по-малко от броя на жертвите от катастрофи (775 за 2010 г.<sup>2</sup>). В човешки план белодробният рак означава изключително мъчително боледуване, травматично лечение и почти сигурен фатален край.

Казано по друг начин, радонът е смъртоносен капан, заложен ни от природата. Цена, дължима за „влизането ни в пещерите“. Но това е капан, за чието съществуване вече знаем и който бихме могли да обезвредим. Първо обаче, трябва да го намерим. Затова, настоящата работа е посветена на измерванията на радон. Акцентът в нея е изключително върху методи, подходящи за масови измервания и такива, носещи максимална информация за риска за здравето на човека.

---

<sup>1</sup>Екстраполираната оценка на база на данни за САЩ е около 500 случая в България. Годишно броят смъртни случаи в САЩ, дължащи се на облъчване от радон, е оценен на 21000 (90% доверителен интервал от 8,000 до 45,000)[3].

<sup>2</sup>По данни на КАТ, разпространени от новинарските агенции.



# Съдържание

<b>I</b>	<b>Увод</b>	<b>1</b>
<b>II</b>	<b>Избор на методи за измерване на <math>^{222}\text{Rn}</math> в сгради. Ретроспективни методи. Компакт-диск метод.</b>	<b>7</b>
II.1	Формиране на дозата и риска при облъчване от $^{222}\text{Rn}$ .	8
II.2	Методи за ретроспективни измервания на $^{222}\text{Rn}$ в жилища	14
II.3	Компакт-диск метод	27
II.4	Сравнение между ретроспективните методи	36
<b>III</b>	<b>Развитие на компакт-дисквия метод. Резултати от реални измервания.</b>	<b>39</b>
III.1	Проявяване на трековете в дискове.	40
III.2	Броење на трекове в дискове.	44
III.3	Калибриране.	61
III.4	Оценка на обемната активност и комбинираната и неопределеност. Диапазон на компакт-дисквия метод.	75
III.5	Резултати от проведени измервания.	83
<b>IV</b>	<b>Измерване на <math>^{222}\text{Rn}</math> във води чрез абсорбция в поликарбонати. Пилотни измервания на <math>^{226}\text{Ra}</math>.</b>	<b>93</b>
IV.1	Метод за измерване на $^{222}\text{Rn}$ във води чрез абсорбция в поликарбонати и бета/гама-измервания.	94
IV.2	Метод за измерване на $^{222}\text{Rn}$ и $^{226}\text{Ra}$ във води чрез абсорбция на радон в поликарбонати и ецване на трекове от алфа-частици	105
IV.3	Сравнение с други методи за измерване на $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ във води	127
<b>V</b>	<b>Заклучение</b>	<b>133</b>
	Приноси	136
	Публикации, в които са представени резултатите от дисертацията	137
<b>VI</b>	<b>Приложения</b>	<b>139</b>
	Приложение А. Теоретично описание на процесите на сорбция и десорбция на $^{222}\text{Rn}$ в поликарбонати. Следствия.	139
	Приложение Б. Оценка на критичното ниво и минималната детектеруема активност.	147

# Глава I

## Увод

Радон-222 (радон) е естествен радиоактивен благороден газ с период на полуразпадане 3.82 d. Той е от семейството на  $^{238}\text{U}$  (Фиг. I.1) и се получава при разпадането на  $^{226}\text{Ra}$  с период на полуразпадане 1600 а. Уран-238 и продуктите му се съдържат в почвата и скалите, а оттам могат да попаднат и в подпочвените води. Като инертен газ, радонът успява да мигрира на значителни разстояния от мястото на образуването си. Той се натрупва в затворени помещения, като са установени три основни начина за постъпването му в сгради. Първият е почвеният газ, проникващ през основите на сградата. Радонът в почвения газ би могъл да се дължи както на  $^{226}\text{Ra}$ , съдържащ се в почвата или скалите, така и на дееманиране от подпочвени води. Изследванията показват, че почвеният газ е най-честия източник на радон в сгради [2]. Вторият начин е ексхалацията на радон от строителни материали. Третият е свързан с използването за битови нужди на вода, съдържаща  $^{222}\text{Rn}$ , при което радонът дееманира във въздуха. Този начин е от значение в случаи, в които се използва кладенчова или минерална вода.

Проблемът с облъчването от радон в жилища получава по-широк отзвук едва през 80-те години на миналия век. Много преди това е забелязан проблема с облъчването на подземните миньори. Макар че сведенията за повишена смъртност от дихателни заболявания сред подземните миньори датират от 16-ти век, едва през миналия век е обяснено, че това заболяване е белодробен рак, причинен от радон. По-подробно историята на установяване на вредното действие на  $^{222}\text{Rn}$  е разгледана в литература [4, 5]. Понастоящем, епидемиологичните проучвания показват, че статистически значим риск за белодробен рак се наблюдава дори при обемни активности под  $200 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  [6]. Преобладава мнението, аргументирано от много специалисти, че няма праг на безопасност [2, 4]. Оценката на риска, получена от най-масовото проучване сред населението, показва, че дълготрайно повишение в средната обемна активност на радона в дадено жилище със  $100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  води до повишение на риска от белодробен рак с 16 % (при 95 % доверителен интервал 5-31 %)

[6]. Оценката на средната за света обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  в жилища е  $39 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ , като в някои държави е 2-3 пъти по-висока [2]. В отделни жилища са наблюдавани обемни активности от порядъка на  $10^5 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  (виж например [7]). Такива екстремни стойности се наблюдават рядко, тъй като разпределението на обемните активности е приблизително лог-нормално (причините за това са коментирани в [8]). По-голяма част от случаите на белодробен рак, дължащи се на радона, са причинени от облъчване при ниски и средни нива на обемната активност [2]. По тази причина Световната здравна организация (СЗО) препоръчва референтно ниво  $100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ , над което да бъдат предприемани мерки за снижаване на облъчването от радон в жилища. Ако това ниво не е разумно достижимо, СЗО препоръчва референтното ниво да е не по-високо от  $300 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  [2].

„Атакуването“ на радоновия проблем минава през провеждането на мащабни проучвания, при които да се открият отделните сгради с повишена обемна активност, както и да се маркират райони с повишен радонов риск. За постигането на тези цели са необходими методи за измерване на радона в жилища/сгради, които са подходящи за масови измервания. Тези методи трябва да са прости за реализиране, с ниска цена и същевременно достатъчно точни. Поради значителните вариации на обемната активност на радона, които в рамките на дни могат да достигнат няколко порядъка, е необходимо измерванията да са кумулативни. СЗО препоръчва при проучванията да се провеждат едногодишни измервания, за да се избегне влиянието на сезонните вариации [2]. Дори едногодишни измервания, обаче, не са представителни за средната стойност на обемната активност за по-дълъг период. Наблюдавани са значителни случайни вариации на средногодишната обемната активност на радона в жилища [9, 10]. Поради това е препоръчително измерванията да обхващат възможно най-дълъг период.

Откриването на сгради и райони с повишен риск има основно лъчезащитна цел и трябва да е последвано от предприемане на противорадонови мерки. За съществуващи сгради това е свързано с мерки за снижаване нивата на радона, а за новостроящи се с превантивни мерки. Изборът на адекватни мерки изисква прецизно изследване на източниците на радон. Затова са необходими методи за измерване на радон във води и в почвен газ. Тези методи също трябва да са подходящи за масови измервания. След реализиране на противорадоновите мерки е важно в сградите периодично да се провеждат контролни измервания на радона.

Другата важна цел на радоновите проучванията е прецизирането на оценката на риска за развитие на рак на белия дроб и проверка на възможността  $^{222}\text{Rn}$  да е причинител и на други заболявания. Макар че това са по-скоро дозиметрични проблеми, най-директният подход за адресирането им е чрез епидемиологични проучвания сред

населението [2, 4]. Като основен проблем на епидемиологичните проучвания се посочва недоброто познаване на облъчването, което участниците са получили в миналото [11, 12, 13]. Необходимо е да се познава историческото облъчване през период преди установяване на заболяването, който се определя от характерния латентен период. Директна оценка на историческото облъчване дават така наречените методи за ретроспективни измервания. Обикновено тези методи са сравнително сложни и са свързани с висока неопределеност на измерването. Тъй като при епидемиологичните проучвания сред населението се работи в областта на ниските дози, откриването на статистически значим риск изисква максимално висока точност на оценката на облъчването. Това е може би причината до този момент в света да са проведени едва няколко неголеми проучвания, базирани на ретроспективни измервания на радон.

През 1999г. от Д. Пресиянов и сътрудници бе предложен поликарбонатен (компакт-диск) метод за ретроспективни измервания на радон в сгради [14]. Той се базира на комбинацията от трековите свойства и високата абсорбционна способност към радон на поликарбонатния материал, от който са направени дисковете (CD и DVD). Още първоначалните изследвания на метода са показали потенциала му да достигне точност много по-висока от тази на другите ретроспективни методи [15, 16, 17]. Освен това, по простота и цена, методът може да конкурира традиционно използваните проспективни методи, а по експресност многократно ги надминава. Компакт-дискът предлага възможност да се адресират както лъчезащитни, така и дозиметрични проблеми, свързани с радона.

Впоследствие изследванията на компакт-дисквия метод продължиха в лабораторията „Дозиметрия и лъчезащита“ в Софийския университет. Паралелно с това беше изследвана и възможността поликарбонатите с висока абсорбционна способност към радон да се използват и за измервания в източниците на радон в жилища (т.е. в почвен газ и води). Част от тези изследвания са обект на настоящата дисертация. Конкретните цели на дисертацията са следните:

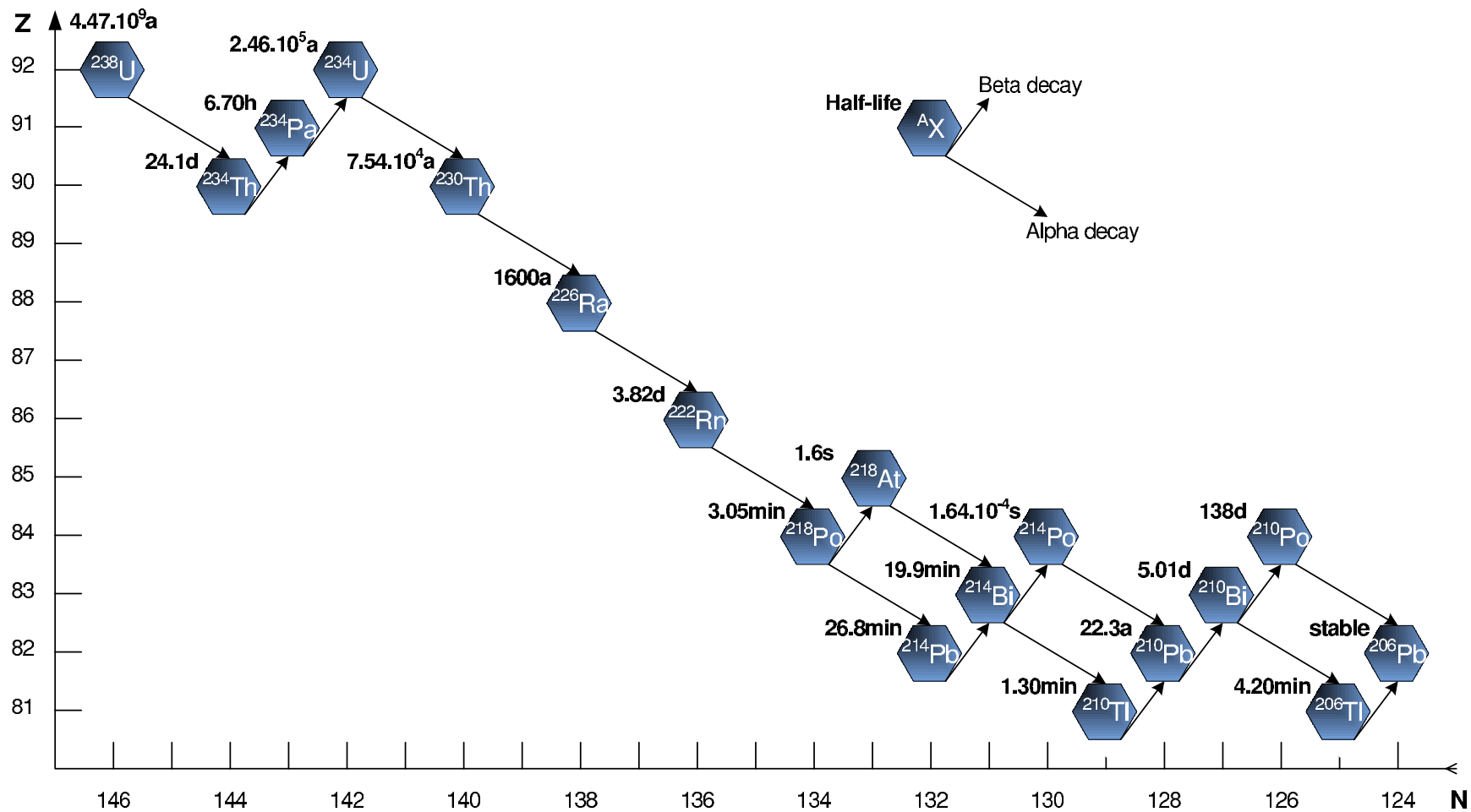
- Да се развие компакт-дисквия метод за целите на масови измервания. Включително да се оптимизират процедурите за броене на трекове и да се установи оптимална процедура за калибриране. Да се проведат пилотни измервания при реални условия и да се оценят възможностите на метода.
- Да се разработят методи за измервания на  $^{222}\text{Rn}$  във води чрез директно облъчване на поликарбонати във водата. Да се оцени приложимостта на разработените методи. Експериментално да се провери възможността методите да бъдат използвани за оценка на обемната активност на  $^{226}\text{Ra}$  във води чрез измерване на  $^{222}\text{Rn}$ .

В глава II от дисертацията е направен кратък обзор на методите за ретроспективни измервания на  $^{222}\text{Rn}$ . Най-широко използваният от тях метод на имплантираното в стъкло  $^{210}\text{Pb}$  е разгледан по-детайлно. В този обзор е включен и компакт-дисковият метод, като са разгледани резултатите от първоначалните изследвания върху него, проведени преди прилагането му в Софийския университет. Направено е сравнение между методите, като са коментирани техните предимства и недостатъци. Аргументирано е твърдението, че компакт-дисковият метод има голям потенциал за точни ретроспективни измервания.

В глава III е представена работата ни по развитие на компакт-дисковия метод. Представена е процедурата за обработка на дисковете. Описан е разработеният от нас алгоритъм за броене на проявените трекове, неговото валидиране и оценката на диапазона му на приложимост. Представена е установената процедура за калибриране, като са посочени условията за приложимост на оценените калибровъчни коефициенти. Разгледани са източниците на неопределеност в оценките за обемната активност на радона и подходите за прилагане и оценка на коригиращи коефициенти. Представени са резултати от международно сравнение, в което участвахме с компакт-дисковия метод. Представени са и резултати от пилотни ретроспективни измервания на  $^{222}\text{Rn}$  при реални условия в сгради и са обобщени възможностите на метода за мащабни проучвания.

В глава IV са представени разработените два метода (експресен и треков) за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води, чрез директно облъчване на поликарбонати във водата. Разгледани са етапите от разработването и оптимизирането на методите и са оценени диапазоните им на приложимост. Представен е разработеният теоретичен модел за описание на плътността на трековете в поликарбонати, облъчени във вода, който е използван за оптимизиране на трековия метод. Показани са резултати от пилотни измервания в реални условия, проведени с експресния метод и резултати от международно сравнение, в което участвахме с трековия метод. Представени са резултати от пилотни измервания на  $^{226}\text{Ra}$  във води, чрез измерване на  $^{222}\text{Rn}$  с помощта на трековия метод. Оценени са границите на приложимост на методите и са сравнени с други методи за измерване на  $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$  във води.





Фигура I.1: Схема на уран-радиевото радиоактивно семейство. Посочените периоди на полуразпадане са взети от литература [18]. Обикновено, изотопите на астата и талия, представени на фигурата, не се разглеждат, поради малката (под 1 %) вероятност за получаването им. На схемата не са представени  $^{218}\text{Rn}$  и  $^{206}\text{Hg}$ , които се получават с още по-малка вероятност.



## Глава II

# Избор на методи за измерване на $^{222}\text{Rn}$ в сгради. Ретроспективни методи. Компакт-дисков метод.

Двете най-важни цели на измерванията на  $^{222}\text{Rn}$  в сгради са:

- Откриване на отделни сгради (жилищни сгради; публични сгради, приоритетно детски градини и училища) с повишена обемна активност на радон и маркиране на райони с повишен радонов риск.
- Оценка на риска за здравето на човека, който представлява радона. Това включва както прецизиране на оценката на риска за белодробен рак, така и изследване на възможността радонът да е причинител и на други заболявания.

Реализирането на първата цел е необходимо за вземане на мерки за понижаване на облъчването. Тя е свързана и с установяване на разпределението на обемните активности на радона в дадена страна. Както бе посочено, подходящи за тази цел са методи лесни за реализиране, с ниска цена и достатъчно надеждни, за да не „пропускат“ проблемни сгради. Те трябва да са кумулативни, като в идеалния случай измерванията да обхващат поне няколко години, за да бъдат отчетени годишните вариации на обемната активност.

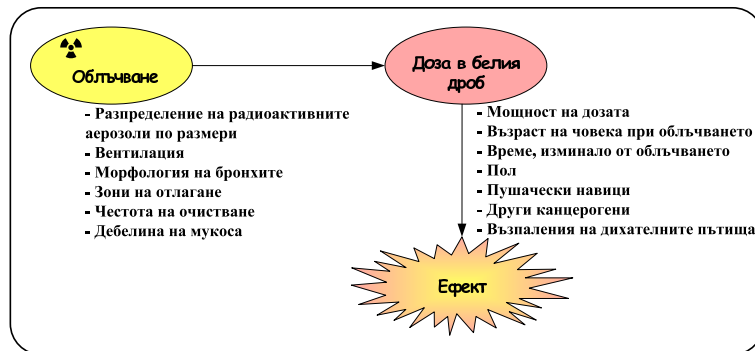
Втората цел е изключително важна за разбиране на тежестта на проблема. Освен това, оценките на риска са ключови при обосновка на необходимостта от провеждане на радонови проучвания и предприемане на защитни мерки. В идеалния случай методите за измерване на радона, прилагани с цел оценка на риска, трябва да дават максимално пълна и точна информация за облъчването. Изборът на подходящи методи изисква познаване на механизмите на формиране на дозата и риска и факторите, които им влияят.

## II.1 Формиране на дозата и риска при облъчване от $^{222}\text{Rn}$ .

Настоящата работа няма за цел да разглежда подробно различните подходи за оценка на дозата и риска, формиращи при облъчване от  $^{222}\text{Rn}$ . Тези подходи се базират на дозиметрични модели, екологични проучвания, епидемиологични проучвания сред миньори или епидемиологични проучвания сред населението. Дозиметричните модели се използват за оценка на еквивалентната доза, която зависи от голям брой фактори (Фиг. II.1). Върху дозата се прилагат коефициенти за оценка на риска, получени за хора, облъчени при различаващи се условия (например оцелели от атомните бомбардировки, облъчени външно) [4]. При останалите подходи не се минава през оценка на дозата, а се оценява наблюдавания риск за белодробен рак сред дадена група хора в зависимост от обемните активности на радона, на които са били изложени. При екологичните проучвания облъчването се оценява на база на разпределението на обемните активности на радона в дадената географска област. Както е коментирано в литературата (например [1, 13] и цитираните от тях работи), неотчитането на индивидуалното облъчване на участниците, пушаческите им навици и други фактори води до сериозни грешки. При епидемиологичните проучвания се оценява обемната активност на радона, на която през годините е бил изложен всеки един от участниците (както от засегнатата, така и от контролната група) и се оценява относителният риск за белодробен рак. Тъй като разпределението по възраст и пол и условията на облъчване на миньорите в значителна степен се различават от тези на населението [2, 4, 13], неопределеностите, свързани с екстраполиране на оценките на риска за миньори към населението, са големи. По-подробно предимствата и недостатъците на различните подходи са разгледани в литература [1, 4, 13]. Световният опит води до следните важни изводи:

- Единственият директен подход за оценка на риска са епидемиологичните проучвания сред населението [2, 4].
- Важно е обемната активност на радона, на която е бил изложен всеки участник в проучването, да се оценява максимално точно чрез измервания. Един от източниците на неопределеност с най-голямо тегло при проучванията е реконструирането на историческото облъчване, през периода на формиране на белодробния рак [11, 12, 13].

По-долу са разгледани „физичните“ фактори, които влияят на формирането на дозата и риска. Именно тези фактори, трябва в максимална степен да бъдат отразени в резултатите от измерванията. Обзор на влиянието на биологичните фактори е направен в литература [1, 4].



Фигура II.1: Фактори, влияещи върху формирането на еквивалентната доза в белия дроб и риска от развитие на белодробен рак. Схемата е превод на схема от [4].

### II.1.1 Фактори свързани с механизма на облъчване

При инхалиране самият  $^{222}\text{Rn}$  не се задържа в дихателната система. За разлика от него, краткоживеещите дъщерни продукти на радона (ДПР) -  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  и  $^{214}\text{Po}$  (Фиг. I.1) при вдишване се задържат в дихателната система. Именно те формират дозата в белия дроб [19]. Достигналите белия дроб ДПР се разпадат в него преди да бъде задействана самоочистващата функция на белия дроб [4]. Счита се, че еквивалентната доза в чувствителните клетки на белия дроб се формира практически изцяло от алфа-частиците, излъчени от ДПР ( $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$ ) [20]. Тъй като при разпадането си останалите ДПР водят до получаване на  $^{214}\text{Po}$ , те също имат принос за формиране на дозата. Наличието на веково равновесие между  $^{214}\text{Bi}$  и  $^{214}\text{Po}$  намалява търсените активности на ДПР до три.

Във въздуха ДПР съществуват под формата на „несвързана“ (като част от атомно-молекулни клъстърци с размери от няколко nm) и свързана фракция (прилепени към аерозоли с размери от 10 до над 1000 nm, среден размер на закрито 100-150 nm). В помещенията те са в силно неравновесие с радона във въздуха, поради способността им да се отлагат върху повърхностите. Скоростта на отлагане на „несвързаната“ фракция е по-голяма, поради по-големия коефициент на дифузия на по-малките частици. Затова, освен от обемната активност на радона, обемната активност на ДПР във въздуха зависи по сложен начин от множество фактори - концентрацията и размерите на аерозолите, вентилацията в помещението, отношението площ на повърхностите/обем на въздуха, температурни градиенти, електростатични полета и други. Възприет е количествен параметър за характеризиране на степента на равновесие между радона и ДПР във въздуха, наречен равновесен фактор (F). Той се дефинира като:

$$F = \frac{PAEC}{PAEC_{eq}}, \quad (\text{II.1})$$

където  $PAEC^1$  е реалната стойност на концентрацията на потенциалната енергия на ДПР във въздуха, а  $PAEC_{eq}$  стойността на същата величина в случай на равновесие между радона и ДПР. Изследванията показват, че средната стойност на  $F$  в обитаеми стаи е около 0.4, като варира между 0.1 и 0.9 [1].

Приносът към  $PAEC$  на „несвързаната“ фракция ДПР се характеризира с параметъра  $f_p$ . Той се дефинира като:

$$f_p = \frac{PAEC_{unatt}}{PAEC}, \quad (II.2)$$

където  $PAEC_{unatt}$  е концентрацията на потенциалната енергия на „несвързаната“ фракция ДПР<sup>2</sup>. Обикновено активността на „несвързаната“ фракция се дължи основно на  $^{218}Po$ , тъй като за характерното време на живот на  $^{218}Po$  и получаване на следващите ДПР, повечето клъстърци или се прилепват към аерозоли, или се отлагат. Типичните стойности на  $f_p$  на закрито са от 0.01 до 0.1, но при много ниска концентрация на аерозолите са наблюдавани и по-високи стойности [4].

От своя страна еквивалентната доза в белия дроб също силно зависи от разпределението по размери на радиоактивните частици. Изследванията показват, че размерът на частиците определя в коя част от дихателната система ще се отложат. Моделните разглеждания показват, че „несвързаната“ фракция, формира по-висока доза, тъй като тя се отлага в бронхиалната област на белия дроб. Свързаната фракция се отлага по-дълбоко в областта на алвеолите, където поради голямата разгърната площ на тъкънта, дозата в чувствителните клетки намалява. По-детайлни разглеждания на тези процеси са направени в литература [4].

Всичко това показва, че за да се направи коректна оценка на погълнатата доза, е необходимо да се познава не само обемната активност на ДПР, а и разпределението им по размери (тук са изключени биологични фактори, като дебит на вдишания въздух, характерно време за почистване на белия дроб и др.). Изследването на разпределението на ДПР по размери изисква сложна апаратура, при която се оценява само моментното състояние на системата. Такава апаратура се използва основно за изследване на типичните разпределения при различни условия в жилища. Кратък обзор на резултати от такива експерименти е представен в литература [4]. По-лесни за реализиране са измерванията

<sup>1</sup>Концентрацията на потенциалната енергия (Potential Alpha Energy Concentration - PAEC) е пълната енергията на всички алфа-частици, излъчени при разпадането на всички атоми на  $^{218}Po$ ,  $^{214}Pb$ ,  $^{214}Bi$  и  $^{214}Po$ , съдържащи се в единица обем въздух, до  $^{210}Po$ .

<sup>2</sup>По-коректна е дефиницията, в която се оказва под какъв максимален размер частиците се приемат за „несвързани“. В литература [21] се предлага за „несвързани“ да се приемат частиците с размер под 15 nm и е използвано означението  $f_{p(15)}$ .

на ДПР, при които се определят обемните активности на ДПР, без разпределението им по размери. Повечето методи за такива измервания са моментни (например [22, 23]), но са разработени и кумулативни методи, които позволяват измервания с продължителност месеци [5, 24, 25].

Все още не е установен единен подход за оценка на еквивалентната доза на база на облъчването, получено от ДПР. На този етап се счита, че при различни условия (по отношение на концентрацията и разпределението на аерозолите по размери) ще са необходими различни коефициенти за оценка на еквивалентната доза [1, 26]. Затова тук е представено само качествено разглеждане на връзката между еквивалентната доза в белия дроб ( $H$ ) и влияещите и физични фактори, предложено от разработените дозиметрични модели:

$$H \propto (a + bf_p)F\overline{A}_v, \quad (\text{II.3})$$

където  $a$  и  $b$  са константи, а  $\overline{A}_v$  е средната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха. Ако концентрацията на аерозоли в дадено помещение е висока (например в него се пуши), то това ще доведе до по-висока стойност на  $F$ , тъй като ще намали отлагането на ДПР по повърхностите. От друга страна, по-високата концентрация на аерозоли ще доведе до по-ниска концентрация на „несвързаната“ фракция, т.е. по-малко  $f_p$ . На базата на подобни моделни разглеждания е изказано твърдението, че ефективната доза е приблизително пропорционална на обемната активност на радона при широк диапазон от концентрации на аерозолите [27, 28].

Горното твърдение може да послужи за обосновка на факта, че при провеждането на радонови проучвания се използват измервания на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$ , а не на тази на ДПР. Практическата причина за това е, че измерванията на радона са многократно по-прости и евтини от измерванията на ДПР. Сравнение на прилаганите методи за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  при проучвания на радон в жилища е представено в литература [2]. Най-широко прилаганите методи използват трекови детектори за регистриране на алфа-частици, които са подходящи за кумулативни измервания, прости са методично и са с ниска цена.

### II.1.2 Зависимост на риска от разпределението на облъчването във времето

Поради латентния период на белодробния рак, дължащ се на спецификата на карциногенезата, рискът към настоящия момент зависи от времето, изминало след облъчването

	Време от облъчването, год.			
	0÷5	5÷14	15÷24	25+
$\theta$ , според [4]	0	1.00	0.78	0.51
$\theta$ , според [29]	0	1.00	1.52	0.76

Таблица II.1: Стойности на коефициента  $\theta$ , отчитащ зависимостта на риска от развитие на белодробен рак от времето, изминало след облъчването. Откъс от таблица в [2].

на индивида. Резултати за зависимостта на риска от времето, изминало след облъчването от  $^{222}\text{Rn}$ , получени при епидемиологични изследвания на миньори са представени в литература [2]. Двете проведени проучвания са със сравним брой случаи (около 60 000) и показват разлики в тази зависимост (Таблица II.1).

Ясно е, че рискът към настоящия момент, който се изследва при епидемиологичните проучвания, зависи от облъчването, получено в миналото. Затова при епидемиологичните проучвания се цели да се оцени историческото облъчване на участниците, като в различните проучвания изследваният период започва от 3 до 35 години назад (виж например сравнение между проучванията сред населението, представено в литература [13]). При повечето проучвания (освен няколко с ограничен брой участници) за реконструиране на облъчването са използвани проспективни измервания [13]. Основните проблеми при този подход са следните:

- Възможно е изследваните лица да са сменяли жилището си.
- Дългосрочното (за период от години и десетки години) облъчване се оценява на база на измервания с максимална продължителност една година.

При участници, сменяли жилището си, се изискват резултати от измервания в предишните им жилища. Наличието на „дупки“ в информацията за историческото облъчване, поради невъзможност да се проведат такива измервания, може да доведе до значителни грешки [11]. Илюстрация за това дава следният пример: ако даден човек е живял при висока обемна активност на радона, то е по-вероятно новото му жилище да е с по-ниска обемна активност (поради несиметричността на разпределението на обемните активности на радона в жилища). Тогава липсата на информация от предишното жилище ще доведе до подценяване на облъчването. Оказва се, че при всички проучвания в немалък процент от предишните жилища не могат да се проведат измервания (според литература [30] в 17÷40 % от случаите). Друг проблем, свързан със смяната на жилища, е че дори предишните жилища да съществуват и новите им обитатели да разрешат провеждане на измервания, е много вероятно техните навици и евентуални ремонтни дейности да са променили обемната активност на радона.



По тези причини при трите най-големи проучвания сред населението е проведен и отделен анализ на риска, базиран само на участници, обитавали едно и също жилище през последните 30 години. Оказва се, че оценките на риска, получени на база на тази ограничена група са по-високи и за трите проучвания [1]. Като част от най-голямото проучване е направена и оценка на риска, отчитаща корекция за случайните годишни вариации в обемната активност на радона. В резултат на това оценката за относителния риск нараства от 0.084 (0.03, 0.158) на 0.16 (0.05, 0.31) [6].

Почти всички проведени проучвания се базират на проспективни измервания на радон, проведени по време на проучването. Изключение са случаите, в които е била налична информация от измервания в миналото. До този момент са проведени и няколко малки проучвания, базирани на ретроспективни измервания, с помощта на метода на имплантираното олово-210 [31, 32, 33]. Резултатите от тях показват, че оценките за риска, получени на база на ретроспективни измервания са по-високи, спрямо тези на база на проспективни измервания в същите жилища [13].

Следователно, точната оценка на облъчването е изключително важна при изследванията на риска. Проблемът с реконструиране на облъчването може да бъде адресиран от методите за ретроспективни измервания. Като основна пречка за прилагането на такива методи при епидемиологични проучвания е посочвана ниската им точност и надеждност (т.е. голямата неопределеност на оценката на обемната активност и възможността за значителни грешки). Другата сериозна пречка за масовото прилагане на ретроспективните методи е сравнително по-сложната им методология и в някои случаи, високата им цена.

### II.1.3 Избор на методи за измерване

На база на горните разглеждания могат да се формулират следните важни критерии, които трябва да бъдат прилагани при избора на методи за епидемиологични проучвания:

- **Методът да позволява ретроспективни измервания, като обхваща достатъчно дълъг период в миналото (поне 15 години назад).**
- **Резултатите за обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха да са с ниска неопределеност и да е минимална вероятността за значителна грешка.**
- **Методът да е подходящ за масови кампании, т.е. измерванията да са с ниска цена, да не изискват високо специализирана лаборатория и да могат да бъдат организирани бързо.**

- Методът да дава резултати и при ниски нива на обемната активност на радона (например около средното  $40 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ), при които живеят повечето хора. Противното би било сериозно ограничение. Освен това изследвания, проведени при по-широк диапазон от обемни активности на радона, водят до по-голяма вероятност за наблюдаване на статистически значими разлики между облъчването на заболелите и на контролната група [13].
- Да е възможно методът да се използва и при смяна на жилището. Тъй като при ретроспективните измервания се използват предмети-свидетели, това означава тези предмети обичайно да се пренасят със собствениците си.

В случай, че даден метод отговаря на втория и третия критерий, то той би бил подходящ и за измервания с лъчезащитна цел, т.е. откриване на рискови сгради и райони. Към горните критерии могат да се добавят и други, но с много по-малка тежест, например методът да дава информация за:

- различни стаи от жилището/сградата (например в многоетажни къщи);
- времевия ход на обемната активност, а не само за нейната средна стойност;
- ДПР, например оценки за  $F$  и  $f_p$ .

Както е показано в следващата част, не е разработен „идеален“ метод. Предложените досега методи за ретроспективни измервания са сравнени на база на горните критерии.

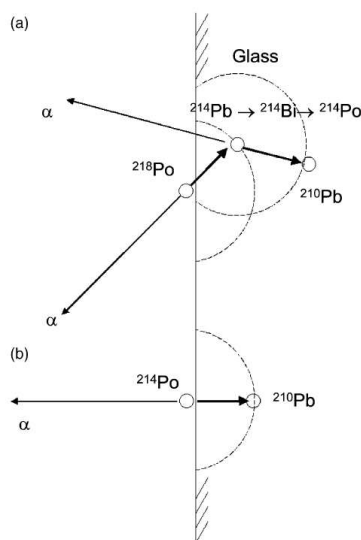
## II.2 Методи за ретроспективни измервания на $^{222}\text{Rn}$ в жилища

В тази част е описан принципът на всички известни ни досега методи за ретроспективни измервания на радон в жилища/сгради. Това са методът на имплантираното в стъкло  $^{210}\text{Pb}^3$ , методът на обемните уловки<sup>4</sup>, методът на натрупаното в костите  $^{210}\text{Pb}$  и методът на лещите на очилата. Компакт-дисковият метод е разгледан в следващата част, където е направено и сравнение между него и останалите методи. Най-подробно тук е разгледан методът на имплантираното в стъкло олово. В сравнение с другите методи, той е по-широко

---

<sup>3</sup>Още наричан метод на повърхностните уловки от английски Surface Trap Method. По-нататък в работата е използвано съкращението ST-метод.

<sup>4</sup>От английски Volume Trap Method или съкратено наричан по-нататък в работата VT-метод.



Фигура П.2: (а) При разпадането на отложен по повърхността  $^{218}\text{Po}$  в стъклото се имплантира  $^{214}\text{Pb}$ , което впоследствие се разпада до  $^{214}\text{Po}$ . При разпадането на  $^{214}\text{Po}$ , откатното ядро  $^{210}\text{Pb}$  се премества, като може да напусне стъклото или да остане вътре. (б) При разпадането си  $^{214}\text{Po}$  на повърхността на стъклото (отложен или получен при разпадане), води до имплантиране на  $^{210}\text{Pb}$ . Фигурата е от литература [37].

прилаган и по-детайлно изследван и дори е използван при няколко малки епидемиологични проучвания. Основната причината за това е, че позволява евтини измервания с помощта на трекови детектори за регистриране на алфа-частици.

### П.2.1 Метод на имплантираното в стъкло $^{210}\text{Pb}$

Още в началото на 20ти век е наблюдавано, че стъкло, което е било в контакт с  $^{222}\text{Rn}$ , остава активно и след почистване на повърхността му [34]. Явлението е обяснено от Хан и Майтнер като откатно имплантиране на дъщерните ядра на нуклиди, търпящи алфа-разпадане. Близо 80 години по-късно, след осъзнаване на проблема с  $^{222}\text{Rn}$  в жилища, е предложено имплантираните в стъклени повърхности дългоживеещи продукти на радона да се използват за ретроспективна оценка на облъчването от радон [35, 36]. Основанията за това предложение са следните:

- Алфа-разпадането на  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$ , отложени върху стъклена повърхност, може да доведе (с теоретична вероятност 50%) до имплантиране съответно на  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{210}\text{Pb}$  в стъклото (Фиг.П.2). Като резултат от двата процеса в повърхностния слой от стъклото (до максимална дълбочина около 100 nm) се натрупва  $^{210}\text{Pb}$ .
- Времето на живот на  $^{210}\text{Pb}$  (с период на полуразпадане 22.3 y) е сравнимо с времето, през което се очаква проява на индуциран от облъчване от радон, рак на белия дроб. Тогава, оценката за активността на  $^{210}\text{Pb}$  в стъклото може да даде информация за историческото му облъчване от радон през периода, който е от интерес за епидемиологичните проучвания.

- След две разпадания  $^{210}\text{Pb}$  се превръща в  $^{210}\text{Po}$ , който е алфа-лъчител (Фиг. I.1). Полоний-210 е по-подходящ за измерване, отколкото бета-лъчителите  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{210}\text{Bi}$ , поради ниската специфична повърхностна активност [34], която трябва да се различава от собствената обемна активност на стъклото.

**Същността на предложения метод се състои в определяне на повърхностната активност на  $^{210}\text{Po}$  върху стъклен образец от изследваното жилище. Съществена особеност на метода е, че полученият „сигнал“ е свързан с активността на отлагалите се по образца ДПР, а не директно с активността на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха.**

Прилагането на метода за ретроспективна оценка на облъчването от радон включва следните основни стъпки:

1. Измерване на специфичната повърхностна активност на  $^{210}\text{Po}$  в изследваната стъклена повърхност.
2. Моделиране на процеса на имплантиране на  $^{210}\text{Pb}$ .
3. Моделиране на процеса на отлагане на ДПР върху стъклената повърхност.
4. Оценка на интеграла по времето на облъчване на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха в помещението.

От предлагането на метода насам са направени много методологични изследвания, имащи за цел да изберат най-добрия подход за реализиране на всяка от горните стъпки. Най-голяма трудност представлява предпоследната стъпка, тъй като тя включва моделиране на сложното поведение на ДПР във въздуха в конкретното помещение. Това е и основната причина изследователите на метода да признават, че той може да генерира изключително нестабилни резултати [38]. Изводите от част от методологичните изследвания върху ST-метода, както и резултати, демонстриращи възможностите му в реални условия, са обобщени по-долу.

### II.2.1.1 Методологични изследвания

- Измерване на специфичната повърхностна активност на  $^{210}\text{Po}$

Част от проведените изследвания са били насочени към разработване на методи за не-деструктивни измервания на специфичната активност на  $^{210}\text{Po}$  върху стъкла. Един такъв

метод е алфа-спектрометрията с импулсна йонизационна камера<sup>5</sup> [39], при която изследваната повърхност играе ролята на катод. Полученият при такива измервания енергиен спектър на напускащите повърхността алфа-частици представлява подложка и тесен пик [40], съответстващ на енергията на алфа-частиците на  $^{210}\text{Po}$  (5.3 MeV). Тесният пик показва, че активността на  $^{210}\text{Po}$  действително е разпределена, така че формира идеално тънък алфа-източник. Подложката (като изключим шума) се дължи на естествената активност на стъклото, което може да съдържа  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и продуктите им. Алфа-частиците на тези нуклиди, напускащи повърхността на стъклото, формират фона при измерванията на  $^{210}\text{Po}$ . Опитът показва, че фонът може да варира значително между различни стъклени образци [41]. Поради това, той трябва да се отчита при всяко отделно измерване.

Детектори като PICs или широкоплощни повърхностно бариерни детектори, обаче, не са подходящи за провеждане на масови измервания на място в жилищата. Понастоящем, те се използват за методологични изследвания и за определяне на референтната повърхностна активност на  $^{210}\text{Po}$  в стъклени плоски източници, подготвени чрез облъчване в радонова атмосфера [40]. Такива източници са необходими за калибриране на масово използваните при метода на имплантираното  $^{210}\text{Pb}$  трекови детектори.

До този момент са предложени няколко автордиографски метода, базирани на трекови детектори и използващи различни техники за разграничаване на алфа-частиците на  $^{210}\text{Po}$ , излъчени от повърхността на стъклото, от фоновия сигнал. При всички тях трековите детектори се поставят директно върху стъклена повърхност в изследваното жилище и се облъчват за определено време (обикновено няколко месеца). Използваните детектори са LR-115 и CR-39. Може би най-широко прилаганият досега метод включва поставени един до друг детектори CR-39 и LR-115 [41]. Детекторът CR-39 регистрира полезния сигнал (от  $^{210}\text{Po}$ ), а детекторът LR-115 се използва за дискриминация на фоновия сигнал. При експерименти с необлъчени стъкла стандартното отклонение при голям брой измервания на „нулевия“ сигнал е около  $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$  [41], което грубо съответства на кумулативно облъчване от радон от  $1 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{y}$ .

Калибрирането на детекторите CR-39 с помощта на референтни стъклени източници показва, че калибровъчният им коефициент може да се определи с относително стандартно отклонение около 10% [40]. За съгласуването между различните методи може да се съди по сравнение между четири лаборатории, проведено в 17 жилища с повишени нива на радона [42]. Всяка от лабораториите използва като основни детектори CR-39, които са калибрирани с едни и същи източници. При оценената специфична повърхностна активност на  $^{210}\text{Po}$  върху изследваните предмети се наблюдава средна относителна

---

<sup>5</sup>На английски pulse ionisation chambers - PICs.

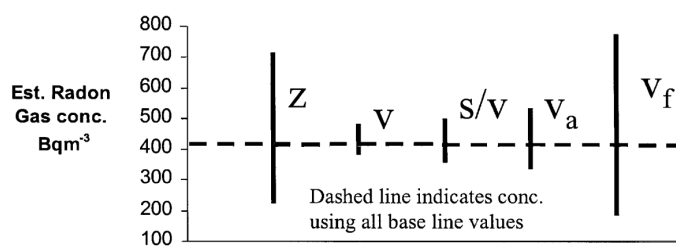
вариация между стойностите, получени от различните лаборатории, от 30% (определена като полуразликата между максималната и минималната стойност, разделена на средната за изследвания образец). Що се отнася до метода, използващ само детектори LR-115, в литература [43] е посочена неопределеност на измерванията на  $^{210}\text{Po}$  от над 30%. От тях 10% се дължат на теоретично моделираната оценка за ефективността на детекторите, а доминиращата част се дължи на възможни вариации в процеса на ецване, към който този тип детектори са много чувствителни.

- Моделиране на процеса на имплантиране на  $^{210}\text{Pb}$ .

Реализирането на тази стъпка има за цел да установи зависимостта между повърхностната активност на  $^{210}\text{Po}$  в стъклото и активността на отложените върху повърхността ДПР. Проведени са изследвания, имащи за цел да проверят еднаква ли е тази зависимост за различни стъклени повърхности в жилища и има ли фактори, несвързани с радона, които могат да променят зависимостта. Изводите от тези изследвания могат да се обобщят по следния начин:

- Може да се приеме, че натрупването на  $^{210}\text{Pb}$  и съответно на  $^{210}\text{Po}$  се дължи изцяло на радона във въздуха. Оценките показват, че количеството  $^{210}\text{Po}$ , което може да се дължи на цигарен дим е пренебрежимо [44]. Освен това, разпределението на активността на  $^{210}\text{Pb}$  в стъклото се запазва постоянно във времето [37, 45], т.е. не се наблюдава дифузия на оловото при стайна температура.
- Част от активността на  $^{210}\text{Po}$  в стъклата може да бъде отнета при почистване с обикновени препарати [46]. Това се обяснява с корозия на повърхностния слой, като степента на корозия е по-висока при висока влажност на въздуха [34, 46].
- При запрашени или омазнени повърхности вероятността за имплантиране намалява, поради малкия пробег на откатните ядра [38].

При моделирането обикновено се приема, че при внимателен подбор на изследваните повърхности последният ефект не оказва голямо влияние. Ефектът от почистването се отчита чрез въвеждане на параметър. Според разглежданията направени в литература [47] варирането на всеки от параметрите, свързани с вероятността за имплантиране на  $^{214}\text{Po}$  и  $^{210}\text{Pb}$  и за връщане на  $^{210}\text{Pb}$  на повърхността, има по-малко от 11% ефект върху резултата за обемната активност на радона (оценен като разлика между минималната и максималната обемна активност, отнесена към минималната). Варирането в разумни граници на параметъра, отчитащ почистването, има 12% ефект.



$^{210}\text{Po}$  surface activity of  $10 \text{ Bq/m}^2$ , and an artefact age of 20 years was assumed.

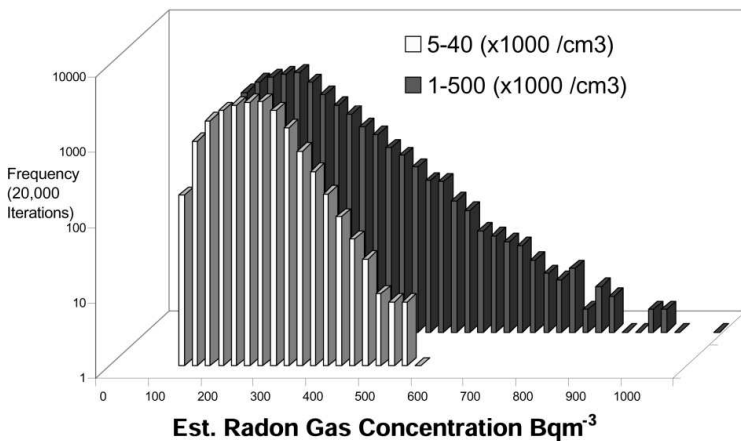
Фигура II.3: Отклик на модела за оценка на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха, при вариране на входящите параметри при една и съща повърхностната активност на  $^{210}\text{Po}$ . Параметрите отляво на дясно са: концентрация на аерозолите, дебит на въздуха през стаята (от вентилация), отношение повърхностна площ/обем на стаята и скорости на отлагане на свързаната и на несвързаната фракция. С пунктирана линия е маркирана обемната активност при базови стойности. Фигурата е от литература [47].

- Моделиране на процеса на отлагане на ДПР върху стъклената повърхност.

Моделирането на процеса на отлагане на ДПР върху стъклени повърхности се базира на модел, описващ поведението на ДПР, в обитавани стаи [48]. Впоследствие моделът е модифициран от различни автори за конкретните цели на ST-метода. Различните изследователи използват различни модификации на модела за оценка на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха. Общото при моделите е, че те са стационарни и описват хомогенна атмосфера в стаята. Последното означава, че резултатите от тях не могат да се прилагат за повърхности, около които има локални особености като закриващи ги предмети и лавици, течение, електростатично поле, градиент на температурата и т.н.

Основните параметри при моделирането са свързани с концентрацията на аерозолите във въздуха, скоростта на обмен на въздуха (вентилация), съотношението между площта на повърхностите в стаята и обема на стаята, и скоростите на отлагане на ДПР. В моделите, представени в литературата, се наблюдават съществени разлики. Например, в литература [49] скоростта на отлагане на свързаната фракция ДПР е пренебрегната спрямо тази на „несвързаната“, а в литература [47] е показано че и двете скорости влияят върху резултата. В литература [47] е представен анализ на чувствителността на резултата към параметрите на конкретния модел, като стойностите на параметрите се избират в интервали, включващи типичните (но не и екстремните) стойности, получени при експериментални изследвания. Резултатите от този анализ са илюстрирани на Фиг. II.3. Вижда се, че всеки от параметрите съществено влияе върху оценката за обемната активност, дори при изключване на екстремните стойности.

Оценки на неопределеността, свързана с моделирането на процеса на отлагане на ДПР, са направени на база на честота на получаване на различни стойности за обемната активност на радона, при една и съща стойност на специфичната активност на  $^{210}\text{Po}$ . При тези анализи се използва предположение за статистическото разпределение на параметри-



<sup>210</sup>Po surface activity of 10 Bq/m<sup>2</sup>, and an artefact age of 20 years was assumed.

Фигура II.4: Честота на получаването на различни обемни активности на радона във въздуха при една и съща повърхностна активност на <sup>210</sup>Po. Входящите параметри на модела се избират чрез Монте-Карло метода, от зададени разпределения. В различен цвят са представени резултати за две различни разпределения на концентрацията на аерозолите. Фигурата е от литература [47].

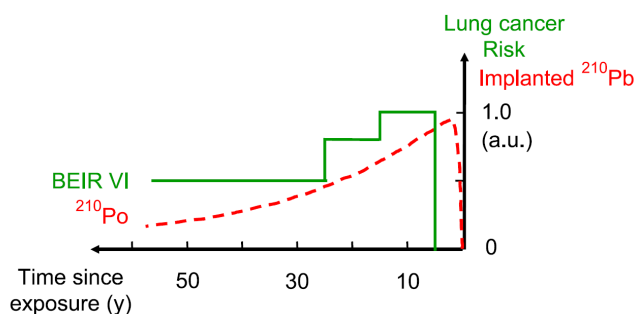
те на модела. В разпределенията, избрани от различните автори, също са налице разлики [43, 47, 49]. Резултатите от един Монте Карло анализ [47] са представени на Фиг. II.4. Публикуваните стойности за оценката на неопределеността на обемната активност на <sup>222</sup>Rn при стандартни условия в стаята и използване на средни стойности на параметрите са в интервала 40÷60% [43, 47, 49]. Въпреки това, поради екстремни условия или недобър избор на повърхности, грешката в оценката за обемната активност може многократно да надвишава тези стойности.

Една от възможностите, за подобряване на резултатите от моделирането е да се ограничи интервала, в който варират скоростите на отлагане на ДПР. За целта, паралелно на измерванията на повърхностната активност на <sup>210</sup>Po, се провеждат и измервания на обемната активност на <sup>222</sup>Rn във въздуха и на ДПР, които се отлагат върху изследваната повърхност. За тези измервания също се използват трекови детектори [31]. По този начин може да се оцени скоростта на отлагане на ДПР към момента на измерване. От друга страна, използването на тази оценка при моделирането може да доведе до грешки, в случай че условията в дадената стая се различават от тези в миналото.

- Оценка на интеграла по времето на обемната активност на <sup>222</sup>Rn във въздуха на помещението.

Моделирането на процесите на отлагане на ДПР и на имплантирането им в стъклото позволява да се направи оценка на процента имплантирани атоми <sup>210</sup>Pb на един атом <sup>222</sup>Rn във въздуха. Поради радиоактивното разпадане на <sup>210</sup>Pb, отношението между броя имплантирани атоми на <sup>210</sup>Pb за цялото време на облъчване и настоящата повърхностна активност на <sup>210</sup>Po зависи от времевия ход на обемната активност на <sup>222</sup>Rn. Този ход, обаче, е неизвестен. Затова, при оценката на интегрираната по времето обемна активност





Фигура II.5: Зависимост на повърхностната активност на <sup>210</sup>Po от времето, изминало от имплантирането на <sup>210</sup>Pb в стъклото (с пунктирна линия). Зависимостта е сравнена със зависимостта на риска за белодробен рак от времето, изминало от облъчването, публикувана в [4] (с плътна линия). Фигурата е от литература [38].

на радона във въздуха се приема, че тя е била постоянна по време на облъчването. Това предположение е потенциален източник на грешка.

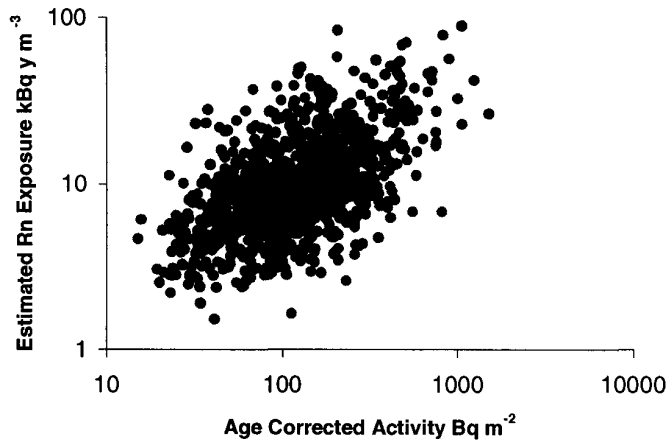
От друга страна, на фиг. II.5 е показано, че зависимостта на активността на <sup>210</sup>Po от времето, изминало от имплантирането на <sup>210</sup>Pb в стъклото, е близка до зависимостта на относителния риск за рак на белия дроб от времето, изминало от облъчването, получена в литература [4] (виж Таблица II.1). Изказана е хипотезата, че е възможно тази нелинейност на сигнала при ST-метода да се използва за „претегляне“ на риска във времето [38]. Тази хипотезата не е проверена при епидемиологични проучвания.

### II.2.1.2 Работа в реални условия

Според горните оценки достижимата неопределеност на обемната активност е 50÷70% при типични условия и добър избор на стъклени повърхности. Истинският тест за ST-метода, обаче, са измерванията в реални жилища при възможно най-голям набор от различни условия на проветряване и концентрация на аерозолите в стаите. Основните въпроси, изследвани при такива измервания са следните:

- Могат ли да се намерят в повечето жилища подходящи стъклени повърхности?
- Възпроизводими ли са резултатите от изследване на различни предмети от една стая или различни предмети на даден човек?
- И най-важният: корелират ли резултатите с интегрираната по времето обемна активност на радона, на която е бил изложен изследвания стъклен предмет?

Изследваните стъклени повърхности се избират, така че да са с добре известна история и да може да се приеме, че скоростта на отлагане на ДПР върху тях е близка до средната за стаята (т.е. да не е повлияна от локални особености). Освен това, трябва да се осигури качество на измерванията на <sup>210</sup>Po върху повърхността (например повърхността да не е релефна или да не е изложена на пряка слънчева светлина, тъй като детекторите CR-39 и в по-голяма степен LR-115 са чувствителни към ултравиолетова светлина).



Фигура П.6: Зависимост между повърхностната активност на  $^{210}\text{Po}$ , коригирана за времето от имплантирането и интегрираната обемна активност на радона, на която са били изложени стъклените повърхности. Втората величина е оценена чрез съвременни кумулативни измервания. Фигурата е от литература [31].

Критерии, спазвани при избор на повърхности, са представени подробно в литература [50, 51]. Направеният при изследванията извод е, че в повечето обитаеми стаи се намират подходящи повърхности. Необходимо е детекторите да се поставят от добре обучени хора.

Въпреки възприетите протоколи за избор на повърхности, са налице разлики между сигнала, получен от различни повърхности в една стая. Например, при изследване на отложените ДПР върху 14 внимателно подбрани повърхности в една стая полученият сигнал е със стандартно отклонение от 20% [50]. В литература [32] е показано сравнение между резултати, получени чрез двойки различни предмети, принадлежащи на едни и същи хора. Изследвани са 225 двойки предмети, облъчени поне 20 години. Макар, че е получена относително добра корелация между резултатите (коефициентът на корелация е  $R = 0.77$ ), не са малко случаите, в които двата резултата се различават в пъти. Поради наблюдаваните разлики и трудния избор на повърхности се препоръчва паралелно да се правят по няколко измервания [34, 38].

За работата на ST-метода при реални условия може да се съди и от гореспомнатото сравнение между четири лаборатории [42], проведено в жилища. За преминаване от повърхностна активност на  $^{210}\text{Po}$  към обемна активност на радона във въздуха четирите лаборатории са използвали различни подходи, но са предположили близки входни параметри за моделиране на поведението на ДПР във въздуха. При оценената обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  се наблюдава средна относителна вариация между стойностите, получени от различните лаборатории, от 60% (определена като полуразликата между максималната и минималната стойност, разделена на средната за изследвания образец).

До този момент са публикувани няколко изследвания върху корелацията между резултати, получени по ST-метода и независимо оценени стойности на интегрираната обемна активност в жилищата. Най-голямото изследване включва 1089 измервания в жилища в Айова, където са установени повишени обемни активности на радона [31]. Това

изследване е част от епидемиологично проучване, в което са включени жени, живели в настоящето си жилище поне 20 години. Интегрираната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$ , на която са били изложени изследваните стъклени повърхности е оценена на база на съвременни кумулативни измервания. Зависимостта между интегрираната обемна активност и активността на  $^{210}\text{Po}$  върху стъклените повърхности е показана на фиг. II.6. Коефициентът на корелация между двете величини е  $R = 0.7$ , а ъгловият коефициент на линейната регресия има стойност, характерна за типичните условия в обитаеми стаи [31]. Въпреки това, както е отбелязано в литература [46] най-високите и най-ниските 5% от данните се различават с фактор 10. Според авторите на изследването корелацията се подобрява значително ( $R = 0.84$ ) при отчитане на съвременните скоростите на отлагане на ДПР, определени чрез измерване. Както обаче бе коментирано, скоростите на отлагане на ДПР в момента на измерване също могат да се различават от тези в миналото.

В литература [52] са систематизирани резултати от няколко по-малки изследвания (с по няколко десетки измервания). При повечето от тях за коефициента на корелация ( $R$ ) между ретроспективно оценените обемни активности на радона и независимите оценки по други методи са получени стойности между 0.6 и 0.8 [32, 52]. По-добра корелация е получена при две изследвания, при които интегрираната обемна активност е оценена по-точно. При едното са използвани нови стъклени повърхности, които са поставени в жилища и училища, като през цялото време на престоя им са провеждани проспективни измервания. Полученият коефициент на корелация е 0.9, но в някои случаи се наблюдава 2-3 пъти разлика между обемната активност на радона, оценена по двата метода [53]. Другото изследване е проведено в сгради, в които са налице резултати от минали измервания, провеждани периодично през последните 10 години. Между резултатите, получени от тези измервания и тези, получени по ST-метода, коефициентът на корелация е 0.89 за един вид ретроспективен детектор и 0.92 за друг [30]. В няколко изследвания е наблюдавана лоша корелация за помещения, в които се пуши в сравнение с тази за помещения, в които не се пуши [30, 51, 52]. Обяснението за това е, че изборът на параметри при моделирането на поведението на ДПР във въздуха в помещения, в които се пуши, е по-труден, тъй като трябва да се отчете честота на пушене и проветряване. Подобен проблем е наблюдаван и при стаи с много електронни уреди [52].

Интересно е още да се отбележи, че според моделните разглеждания, повърхностната обемна активност на  $^{210}\text{Po}$  в стъклените повърхности се очаква да е корелирана с коефициента  $f_p$  [47, 49]. Причината за това е, че скоростта на отлагане на ДПР е много по-висока за „несвързаната“ фракция и именно тя формира по-голямата част от повърхностната активност на  $^{210}\text{Po}$  в стъклените повърхности. Изказано е предположението, че в

комбинация с ретроспективен метод, позволяващ директна оценка на обемната активност на радона, ST-метода може да се използва за оценка на  $f_p$  и по-прецизна оценка на дозата. Тъй като единственият дотогава ретроспективен метод, отговарящ на това условие, е бил методът на обемните уловки (разгледан в следващата част) е предложено той да се комбинира с метода на имплантираното в стъкло олово [54]. До момента не сме открили публикувани резултати от подобни изследвания.

## II.2.2 Метод на обемните уловки

През 1996 г. е предложен друг метод за ретроспективни измервания на радон в жилища [55], който също използва дългоживеещите продукти на  $^{222}\text{Rn}$ , но по съществено различен начин. При метода се използва факта, че радонът свободно дифундира в порести материали и при разпадането си генерира ДПР, които се задържат в порите. От своя страна, ДПР се разпадат и в материала се натрупва  $^{210}\text{Pb}$ , което води до генериране и на  $^{210}\text{Po}$ . Тоест, порите на материала играят ролята на обемни уловки за дългоживеещите продукти на радона. Като съществено предимство на метода се изтъква, че активността в порите не зависи от поведението на ДПР във въздуха в помещението и прилагането на метода не включва моделирането му. Това е така, защото се приема, че ДПР не могат да проникнат дълбоко в материала. Тогава, генерираните в порите  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{210}\text{Po}$  се дължат само на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха.

**Същността на метода на обемните уловки се състои в определяне на обемната активност на  $^{210}\text{Po}$  в порест материал (пълнеж на матраци или мебели). Полученият „сигнал“ е свързан директно с активността на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха.**

Прилагането на метода включва вземане на малки проби от вътрешността на материала. Важно е да се избягва повърхността, където е възможно да са прониквали и ДПР от въздуха. След това от материала радиохимично се извлича  $^{210}\text{Po}$ , като степента на извличане се определя чрез добавяне на  $^{208}\text{Po}$ . Процедурата по извличане е подробно описана в литература [56]. Използваният метод за измерване на  $^{210}\text{Po}$  и на  $^{208}\text{Po}$  е алфа-спектрометрия. Процедурата за подготовка на извлечения разтвор за измерване също е подробно описана в [56].

Най-подходящ материал за метода на обемните уловки се е оказал пълнежа на матраци и мебели, като дунапрен, вълна, памук и т.н. Някои от съществените проблеми, свързани с прилагането на метода са следните:

- Оценка на обема на взетите проби.

- Разлики в способността на материалите да адсорбират радон, което води до разлики в съотношението сигнал/обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха.
- Много прашни предмети, при които няма чиста сърцевина за вземане на проби.
- Невъзможност да се провери дали материалът не е рециклиран и използван преди.
- Високата цена на предметите, от които се взема проба, поради което не всички собственици са склонни да се съгласят с повреждането им.

В литературата долната граница на метода не е посочена експлицитно, но интегрирани обемни активности от  $1.2 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-3}$  у са цитирани като много ниски и е отбелязано, че при тях измерванията на  $^{210}\text{Po}$  продължават няколко дни [56]. Посочената неопределеност на метода е 30% [57]. При единични измервания е наблюдавано добро съответствие между резултатите от VT-метода и независимо оценени обемни активности на радона [42, 57, 58]. Все още методът не е използван при по-мощни изследвания. Една от сериозните пречките за това е необходимостта от прилагане на радиохимична процедура в специализирана лаборатория.

### II.2.3 Метод на лещите на очилата

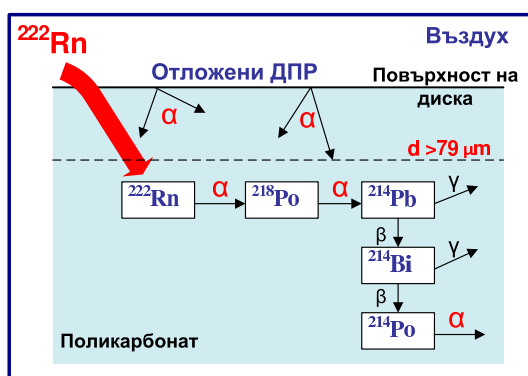
През 1987 Флайшер предлага ретроспективни измервания на  $^{222}\text{Rn}$  с помощта на лещите на очила [59]. Предпоставката за това е, че един от най-често използваните съвременни материали за изработка на диоптрични очила е CR-39 [60, 61]. Затова алфа-частиците, излъчени от  $^{222}\text{Rn}$  и ДПР във въздуха формират трекове в лещите на очилата. Приема се, че плътността на тези трекове е пропорционална на интегрираната по времето на облъчване обемна активност на радона. Сигналът обаче, зависи от сложното поведение на ДПР във въздуха. Авторите на метода са избрали да обработват вътрешната страна на очилата, където плътността на трековете се формира от ДПР, достигнали чрез дифузия и по-малко зависи от външни фактори. Освен това, тази страна е полирана при производството, което нулира сигнала. Оказва се, че плътността на трековете от вътрешната страна зависи от разстоянието до носа на човека, като по-близо до носа достигналите ДПР са по-малко и съответно плътността на трековете е по-малка. Следователно, реконструкцията на геометрията на облъчване е сложна и трябва да отчита и навиците на притежателя на очилата (кога ги носи, почиства и т.н.). Връзката между сигнала и обемната активност на радона е различна при отделните случаи. Друга методологична трудност при този метод е, че трековите свойства на лещите значително се различават (наблюдавани са разлики

в чувствителността над 5 пъти [61]). Това изисква индивидуално калибриране при всяко отделно измерване, което може да се проведе чрез допълнително облъчване.

Проблемите свързвани с прилагането на метода за епидемиологични проучвания са, че обикновено лещите се използват само няколко години и че не всички хора носят очила. От друга страна, очилата в много случаи са непрекъснато със собствениците си и лещите им играят роля на индивидуален дозиметър. При оценка на облъчването не е необходимо да се правят измервания в различни стаи от жилището и предположения за облъчването извън жилището. Това е характеристика на метода, която липсва при останалите методи за ретроспективни измервания. Резултати от измервания, представени в литература [61], показват, че методът на лещите на очилата позволява измервания в широк диапазон от обемни активности на радона - от няколко десетки до няколко хиляди  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Отчитайки недостатъците на метода, авторът му отбелязва, че той е подходящ за прилагане като допълващ други методи [61].

## II.2.4 Метод на натрупаното в костите $^{210}\text{Pb}$

Друг принципно възможен подход за оценка на обемната активност на радона, на която е изложен даден индивид, е да се използва факта, че оловото, включително  $^{210}\text{Pb}$ , се натрупва в човешкия скелет. Периодът на полу-извеждане на  $^{210}\text{Pb}$  от костите е около 15 години. Понастоящем са в процес на разработка методи за *in-vivo* измерването на  $^{210}\text{Pb}$  в човешкия скелет с нискофонова гама-спектрометрия (виж например литература [62] и цитираните там). Измерванията трябва да се провеждат в защитено помещение с детектори, чувствителни към ниската енергия на гама-лъчите на  $^{210}\text{Pb}$  (46.5 keV). Съществен проблем при този подход е, че от цялото количество  $^{210}\text{Pb}$  в човешкия скелет средно само около 2 % се дължи на инхалиране на ДПР, като от останалото 86 % се дължи на поглъщане и около 12 % на директно инхалиране на  $^{210}\text{Pb}$  от атмосферата [63]. Допълнително около 75 % могат да бъдат добавени чрез тютюнопушене и приемане на алкохолни напитки. За случаи на хора, изложени в продължение на 20 години на обемни активности от  $2000 \text{ Bq m}^{-3}$ , радонът може да добави измеряема активност на  $^{210}\text{Pb}$  към цялото количество [63]. Тези разглеждания са направени на база на установена корелация между облъчването от радон и активността на  $^{210}\text{Pb}$  в костите на подземни миньори. На този етап методът може да бъде прилаган само при хора, изложени на много високи нива на радон.



Фигура II.7: Илюстрация на процесите при облъчване на диск в атмосфера, съдържаща радон. Тези процеси обуславят възможността за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  с дискове, чрез проявяване на трековете от алфа-частици на дълбочина по-голяма от  $79\ \mu\text{m}$ .

## II.3 Компакт-дисков метод

Принципно нов метод за ретроспективни измервания на  $^{222}\text{Rn}$  в жилища, който не е базиран на измерване на дългоживеещите продукти на радона, е предложен от Пресиянов и сътрудници [14, 15, 64]. Авторите показват, че компакт дисковете (CD) и дигиталните видео дискове (DVD) имат свойството да „записват и запазват“ информация за обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  в околния въздух [15, 16]. С помощта на диск, съхраняван в дадено жилище, може ретроспективно да се определи средната обемна активност на радон в жилището за периода, през който дискът е бил съхраняван.

Методът се основава на способността на материала, от който се изработват дисковете (CD и DVD), да абсорбира радон [65]. Този материал е вид поликарбонат (синтезиран от бисфенол-А и имащ голям брой търговски наименования, между които Makrolon<sup>®6</sup> и Lexan<sup>®7</sup>), за който е известно, че притежава свойства на твърдотелен детектор на следи [66, 67]. Детектори, направени от този материал, се използват за регистриране на алфа-частици и намират приложение в проспективните измервания на радон [68]. Авторите на компакт-дисковия метод за пръв път предлагат способността на поликарбонатния материал да абсорбира радон да се комбинира с трековите му свойства и да се използва за ретроспективни измервания на радон [15, 16, 17].

### II.3.1 Същност на компакт-дисковия метод

Възможността за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  чрез CD/DVD се обуславя от следните процеси, илюстрирани на Фиг. II.7.:

- Поликарбонатният материал на дисковете абсорбира  $^{222}\text{Rn}$  от околния въздух.

<sup>6</sup>Makrolon<sup>®</sup> е търговска марка на Bayer. От Makrolon<sup>®</sup> се произвеждат твърдотелни детектори на следи с търговското наименование Makrofol<sup>®</sup>.

<sup>7</sup>Lexan<sup>®</sup> е търговска марка на SABIC Innovative Plastics. Името Lexan<sup>®</sup> се използва и за твърдотелните детектори на следи, произвеждани от този материал.

Нуклид	$^{222}\text{Rn}$	$^{218}\text{Po}$	$^{214}\text{Po}$	$^{220}\text{Rn}$	$^{216}\text{Po}$	$^{212}\text{Po}$
Начална енергия, MeV	5.49	6.00	7.69	6.29	6.78	8.79
Пробег в поликарбонат, $\mu\text{m}$	37.5	42.9	63.7	46.2	52.1	79.2

Таблица II.2: Пробег на алфа-частиците на радона и ДПР и на торона и продуктите му в поликарбонат. Включени са алфа-частиците, излъчвани с вероятност  $>1\%$ . Стойностите са проектирани пробези, пресметнати от програмата ASTAR [69].

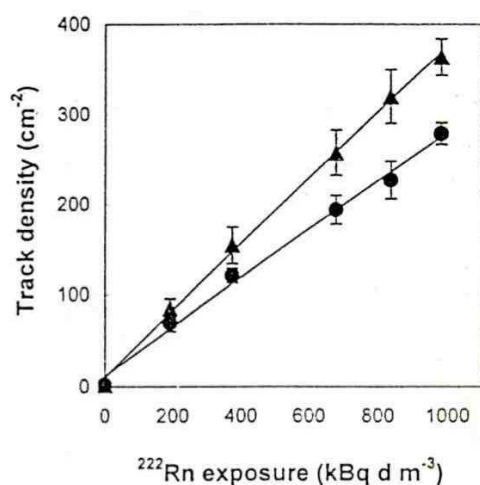
- Вътре в обема на диска  $^{222}\text{Rn}$  се разпада, като той и краткотживеещите му продукти на разпадане  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$  излъчват алфа-частици. При преминаването си през поликарбоната тези алфа-частици формират в него трекове.
- Радонът дифундира в обема на диска до дълбочини, по-големи от тези, на които могат да достигнат алфа-частици, излъчени от нуклиди извън обема на диска. Трековете, формирани на такива дълбочини се дължат само на абсорбирания  $^{222}\text{Rn}$  и неговите продукти на разпадане. Тогава, броят на тези трекове е директно свързан с обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха.

Следните алфа-излъчващи нуклиди могат да съществуват във въздуха в значими концентрации:  $^{222}\text{Rn}$  и неговите краткотживеещи продукти  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$ , и  $^{220}\text{Rn}$  и неговите продукти  $^{216}\text{Po}$  и  $^{212}\text{Po}$ . Като изключим  $^{222}\text{Rn}$ , те не могат да проникнат в поликарбоната до дълбочини по-големи от микрометър (виж част II.3.2). Тогава, те допринасят за трековете само в определен слой под повърхността, не по-голям от пробега на излъчваните от тях алфа-частици (фиг. II.7.). Стойности на пробезите на алфа-частиците на радона и ДПР и на торона и продуктите му в Makrofol<sup>®</sup> са дадени в Таблица II.2. Вижда се, че алфа-частиците на радона и ДПР, излъчени извън поликарбоната, не могат да достигнат до дълбочини по-големи от  $64\ \mu\text{m}$ . Алфа-частиците на  $^{220}\text{Rn}$  и неговите продукти не могат да достигнат до дълбочини по-големи от  $79\ \mu\text{m}$ . От друга страна, абсорбираният  $^{222}\text{Rn}$  дифундира до дълбочини<sup>8</sup> по-големи от  $79\ \mu\text{m}$ .

**Същността на компакт-дисквия метод се състои в проявяване на трековете, формирани в поликарбонатния материал на диска на определена дълбочина  $d$ , по-голяма от  $79\ \mu\text{m}$ . Плътноста на проявените трекове (броят трекове върху единица площ) е пропорционална на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха, интегрирана по времето на облъчване. Горното твърдение е показано експериментално от авторите на метода [15, 16]. На Фиг.II.8 са представени, получени от**

<sup>8</sup>Дълбочината се отчита от задната повърхност на диска, тъй като при CD-тата предната страна е покрита с фолио, а при DVD-тата е надписана и/или релефна, което я прави неподходяща за анализ. По-нататък в работата, ако не е уточнено друго, под „повърхност“ се разбира само задната повърхност на дисковете.





Фигура II.8: Зависимост между чистата плътност на трековете и интегрираната обемна активност, при която са облъчени дисковете на дълбочина 83 μm (Δ) и 117 μm (○) - от литература [16].

тях корелации [16] между плътността на трековете на две различни дълбочини (83 μm и 117 μm) в облъчени компакт-дискове и интегрираната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  във въздуха, при която са облъчени отделните дискове. Както се вижда, получени са отлични корелации.

Експерименталните данни на фиг. II.8 съответстват на обемни активности от 53 до 270 Bq.m<sup>-3</sup> при 10 години облъчване на дисковете. Тези стойности са в интервала на реално наблюдаваните нива на радон в жилища. Това, както и фактът, че във почти всяко жилище са налице CD-та/DVD-та, е основание за предложението компакт-дисковете да бъдат използвани като „ретроспективни“ детектори на радон [15, 16]. Успешното прилагане на метода за ретроспективни измервания за епидемиологични проучвания, обаче, изисква пропорционалността между плътността на трековете и обемната активност на радона във въздуха да се запазва в продължение на десетки години. Резултатите от изследванията, проведени от Пресиянов и сътрудници, върху различните фактори, които биха могли да нарушат пропорционалността, са представени в следващата част.

### II.3.2 Изследване на влиянието на различни фактори върху плътността на трековете

Запазването на линейната зависимост между плътността на трековете (при  $d > 79 \mu\text{m}$ ) и интегрираните обемни активности на радона по време на облъчване на диска изисква:

1. Формираните трекове да се запазват, т.е. да не се наблюдава „фейдинг“. Поликарбонатният материал да не променя трековите си свойства за времето на облъчване на дисковете, т.е. да не старее.
2. На дълбочина  $d > 79 \mu\text{m}$  да не се наблюдават трекове, формирани от източници, различни от абсорбирания  $^{222}\text{Rn}$  и неговите краткоживеещи продукти или тяхната

плътност да е пренебрежима.

3. Влиянието на външни фактори като температура, налягане, влажност и други върху процеса на абсорбция на радон в поликарбоната (и съответно върху плътността на трековете) да е пренебрежимо или да може да бъде отчетено.

Опитът, който имат авторите на метода от дългогодишна работа с Makrofol<sup>®</sup> детектори (използвани в лабораторията по ядрена физика на университета на Гент от 1981г.) показва, че Условие 1 е изпълнено [64]. Единственият фактор, за чието влияние не може да се съди по опита с други детектори, е лазерната светлина, използвана за записване и четене на информация от диска. Действително е наблюдавана промяна на трековите свойства на друг вид трекови детектори, CR-39, при облъчване с лазерен сноп с мощност от  $5 \div 15$  W [70]. Мощността на лазерния сноп, използван за четене на информация от дискове, обаче, е много по-малка - около 1 mW. Теоретичните разглеждания, представени в [71], показват, че прослушването на аудио диск с продължителност 74 min 1000 пъти съответства на излагане на диска на дневна светлина между 16 и 33 min. Поликарбонатните детектори Makrofol<sup>®</sup> и Lexan<sup>®</sup> не са показали промяна на свойствата си при излагане на светлина. Затова този ефект се пренебрегва.

За да се провери доколко е изпълнено Условие 2, са разгледани възможните източници на „паразитни“ трекове. Това са: ДПР, несвързани с абсорбирания радон;  $^{210}\text{Po}$ , получен при разпадане на абсорбиран в диска радон;  $^{220}\text{Rn}$  и неговите продукти и радиоактивни примеси в поликарбонатния материал. Дефекти в материала, които след проявяване приличат на трекове могат да се формират от други източници (например т.нар. водни включвания [72]). Фактите, които показват, че Условие 2 може да се счита за изпълнено са:

- В литература [64] е посочено, че при използването на Makrofol<sup>®</sup> детектори от едни и същи листи, съхранявани в продължение на години в чиста от радон атмосфера, не е наблюдавано значимо повишение на фоновата плътност на трековете. Това показва, че този материал има ниско съдържание на радиоактивни примеси, както и че в него се формират малко дефекти, които могат да бъдат сбъркани с трекове. Следователно, поликарбонатните дискове също могат да се използват при дългогодишни облъчвания без да се очаква съществено увеличение на трековете за сметка на тези източници.
- Би следвало поликарбонатът да абсорбира и  $^{220}\text{Rn}$ , но поради краткия период на полуразпадане на торона (55.6 s), той се разпада напълно (>99 %) преди да достигне дълбочина от 3  $\mu\text{m}$  (оценката е направена теоретично). Влиянието на  $^{220}\text{Rn}$  е

изследвано и експериментално [17]. Детектори Makrofol® са облъчени за 3 седмици в атмосфера, съдържаща  $^{220}\text{Rn}$ , при интегрирана обемна активност  $>1.6 \text{ kBq}\cdot\text{y}\cdot\text{m}^{-3}$ . Получената плътност на трековете на дълбочина  $83 \mu\text{m}$  е малко по-висока от фонската ( $10.0 \pm 1.2 \text{ cm}^{-2}$  срещу  $3.8 \pm 1.1 \text{ cm}^{-2}$ ). За сравнение, при облъчване с интегрирани обемни активности на  $^{222}\text{Rn}$  от същия порядък очакваната плътността на трековете на същата дълбочина е  $>2000 \text{ cm}^{-2}$ . Може да се направи извод, че влиянието на торона и продуктите му е пренебрежимо. Като част от същия експеримент е направено и измерване на отложените по повърхността продукти на  $^{220}\text{Rn}$  чрез общо алфа-броене. Оценено е, че през  $1 \text{ cm}^2$  от повърхността на детектора за цялото време на облъчване са преминали 730 000 алфа-частици, дължащи се на отложените нуклиди. Липсата на значително повишение на броя на трековете при такъв флуенс доказва, че полепналите по повърхността алфа-лъчители не могат да формират трекове на разглежданите дълбочини.

- Вследствие на разпадането на ДПР в поликарбоната се натрупва  $^{210}\text{Pb}$  и съответно  $^{210}\text{Po}$ . Периодът на полуразпадане на  $^{210}\text{Pb}$  е сравним с времената на облъчване на по-старите дискове. По тази причина в тях се формират и трекове, дължащи се на  $^{210}\text{Po}$ . Плътността на тези трекове е функция на времевия ход на обемната активност на радона (като абсорбираната по-отдавна активност допринася с по-голямо тегло). Тъй като не е пропорционална на интегрираната обемна активност, компонентата дължаща се на  $^{210}\text{Po}$  се разглежда като „паразитна“. Приносът на  $^{210}\text{Po}$  е бил изследван чрез теоретично моделиране на активността на този нуклид в диска при предположение за постоянна обемна активност на радона. Оценен е коригиращ фактор, отчитащ повишението в плътността на трековете спрямо случая на краткотрайни облъчвания при същите условия. Стойностите на този фактор, дадени в [16], са както следва:

- При облъчване 1 година - 1.002;
- При облъчване 10 години - 1.042;
- При облъчване 20 години - 1.081;

Тогава грешката, дължаща се на неотчитане на приноса на  $^{210}\text{Po}$ , не надвишава 10 % при реални времена на облъчване и би могла да се намали чрез използване на горните коригиращи фактори.

- Както бе коментирано (виж част II.2.1), поведението на ДПР във въздуха е сложно и зависи от множество фактори. Поради това активността на дъщерните продукти, отложени по повърхността на диска или намиращи се във въздуха в близост до диска,

не се определя единствено от обемната активност на радона във въздуха. Трековете, формирани от ДПР във въздуха или отложени по повърхността на диска, се считат за „паразитни“. Теоретичните разглеждания, направени в предишната част показват, че тези трекове са локализирани в горния слой под повърхността на диска. Експериментална проверка на това твърдение е направена от Пресиянов и сътрудници с помощта на няколко различни експеримента [16, 17, 64]. При първият експеримент Makrofol<sup>®</sup> детектори са облъчени от алфа-частици с енергия 7.69 MeV, излъчени от  $^{214}\text{Po}$ , задържан върху филтър. При флуенси на частиците от  $0 \div 50000 \text{ cm}^{-2}$  не е наблюдавана разлика в плътностите на трековете на дълбочина  $d \geq 80 \mu\text{m}$ . При друг експеримент група детектори са облъчени в атмосфера, съдържаща радон като част от тях са облъчени покрити с филтър, който пропуска радона, но спира ДПР. Сравнението между покритите и непокритите детектори не показва разлика в плътностите на трековете (при  $d \geq 80 \mu\text{m}$ ). При описаните дотук експерименти, за да се проявят трековете на нужната дълбочина предварително е отнет слой от повърхността чрез химично преецване. Важно е да се провери, че използваната процедура на преецване [73] не води до проявяване на трекове от повърхностния слой в дълбочина. Косвено доказателство за това е гореописания експеримент, при който дискове са облъчени с различен флуенс алфа-частици. Директна проверка е направена чрез сравнение между детектори, при които повърхностният слой е отнет механично и чрез химично преецване. При този експеримент 10 детектора са облъчени при една и съща обемна активност на радона, като в 5 от тях повърхностен слой от  $80 \mu\text{m}$  е отнет механично, а в останалите химично. Определената средна плътност на трековете в първата група е  $297 \pm 16 \text{ cm}^{-2}$ , а във втората  $289 \pm 22 \text{ cm}^{-2}$ . Еднаквите (в рамките на неопределеностите) стойности показват, че при химичното преецване не се проявяват трекове от повърхностния слой.

Направените експериментални и теоретични изследвания потвърждават факта, че трековете проявени на дълбочина  $d \geq 80 \mu\text{m}$  в облъчени дискове, се дължат на абсорбирания  $^{222}\text{Rn}$  и неговите краткоживеещи продукти, т.е. че Условие 2 е изпълнено.

За да се провери Условие 3, експериментално е изследвано влиянието на следните фактори: налягане, влажност, температура, прах и цигарен дим. Освен това, е изследвано и влиянието на начина на съхранение на дисковете, т.е. различава ли се плътността на трековете в дискове съхранявани без опаковка и в такива съхранявани в кутийки. Резултатите от проведените лабораторни експерименти са:

- Не е установена разлика между плътностите на трековете в дискове, облъчени неопаковани и в дискове, облъчени в кутийки. Използвани са два вида кутийки - с

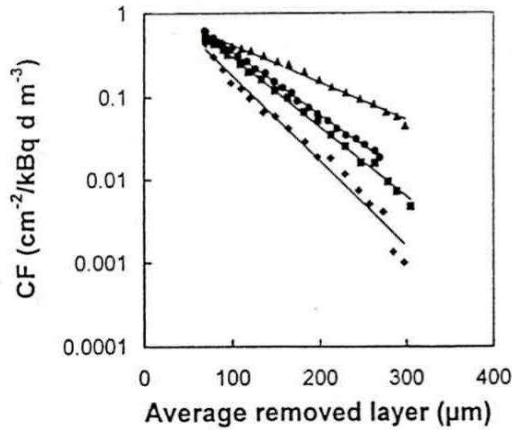
дебелина 5 и 10 mm [16].

- Дискове, облъчени при три различни налягания (57.4 kPa, 100.6 kPa и 147.7 kPa), но при едни и същи други условия, също са показали еднакви плътности на трековете [16]. Тъй като горните налягания покриват много по-широк интервал от реално съществуващите при естествени условия, то може да се заключи, че при облъчвания на дискове в жилища налягането не оказва влияние.
- Сравнявани са плътностите на трековете в дискове, облъчени при относителна влажност от 0%, 60% и 100%. Плътностите на трековете в дисковете, облъчени при 0% и 60%, съвпадат, докато тази при 100% е с 6% по-ниска [16]. Тъй като влажността на въздуха в жилищата е нормално значително по-ниска от 100%, нейното влияние може да се пренебрегне.
- Ефектът от температурата на облъчване е изследван като групи детектори са облъчени при три различни температури - 2°C, 19.5°C и 40°C. Установен е значителен ефект. Направена е оценка, че при  $d = 80 \mu\text{m}$  температури в интервала 15÷25°C могат да доведат до разлики от -10% до +7% спрямо температура от 20°C, а в интервала 10÷30°C от -22% до +12% спрямо същата температура [71].
- Не е установено влияние на прах по повърхността върху плътността на трековете в облъчени Makrofol® детектори [17]. При детектори, изложени на цигарен дим до пожълтяване на материала, е наблюдаван сигнал с 11% по-нисък от този на неизложени на дим детектори [17]. Тъй като дори дисковете съхранявани в стаи, в които редовно се пуши, не променят значително цвета си, се счита че реалният ефект от цигарения дим е много по-слаб.

Единственият външен фактор, за който досега е установено, че има съществен ефект върху абсорбцията на радон в дисковете (и съответно върху плътността на трековете) е температурата. В следващата част е разгледано как след облъчването (*a posteriori*) може да се направи температурна корекция.

### II.3.3 Дълбочинно разпределение на трековете в дискове. *A posteriori* температурна корекция.

Идеята за температурна корекция е породена от това, че температурният ефект е по-силно изразен на по-големи дълбочини под повърхността на диска. За да се провери възможно ли е от дълбочинното разпределение на трековете да се получи информация за температурата на облъчване, са проведени серия експерименти. При тях групи детектори са облъчени при



Фигура II.9: Зависимост на калибровъчния коефициент от дълбочината под повърхността, на която се ецват трековете. Зависимостите са при различни температури (от долу нагоре): 5°C, 19.5°C, 23.5°C и 38°C. Фигурата е от литература [16].

4 различни температури - 5°C, 19.5°C, 23.5°C и 38°C. Тъй като облъчванията на отделните групи не са проведени при точно еднакви интегрирани обемни активности на радона, за сравнението е използван калибровъчния коефициент ( $CF$ ). Той е дефиниран като:

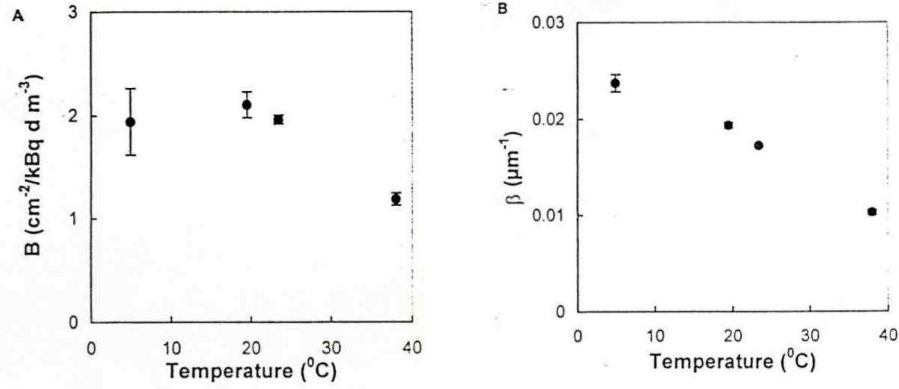
$$CF(T, d) = \frac{n_{\text{net}}(T, d)}{I_V}, \quad (\text{II.4})$$

където  $n_{\text{net}}(T, d)$  е чистата плътност на трековете (т.е. плътността след изваждане на фоновата плътност) при дълбочина  $d$  и температура  $T$ , а  $I_V$  е интегрираната по времето обемна активност на радона, при която е проведено облъчването. На Фиг. II.9 са показани зависимостите на  $CF$  от дълбочината, получени в литература [16] за четирите температури на облъчване. Както се вижда, в полулогаритмичен мащаб дълбочинната зависимост на  $CF$  се описва добре с права линия. Това съответства на експоненциално намаляване на  $CF$  (и съответно на плътността на трековете):

$$CF(T, d) = B(T) \exp(-\beta(T)d), \quad (\text{II.5})$$

където  $B(T)$  и  $\beta(T)$  са функции на температурата, представени за четирите температури на Фиг. II.10. Трябва да се отбележи, че горните изследвания са проведени за дълбочини  $d \geq 70 \mu\text{m}$ . За дълбочини по-малки от  $65 \mu\text{m}$  не е коректно да се дефинира калибровъчен коефициент и зависимостта (II.5) не е валидна (когато е възможно във въздуха да има торон е необходимо  $d \geq 80 \mu\text{m}$ ).

Както се вижда на Фиг. II.9 стойностите на  $CF$  за различните температури са по-близки за малки дълбочини. По-малкият наклон на правата, описваща зависимостта при 38°C в сравнение с този на останалите прави показва, че разпределението на плътността на трековете е по-близко до хомогенното при по-високи температури. Това поведение може елементарно да се обясни с по-големия коефициент на дифузия, който позволява на радона да проникне до по-големи дълбочини преди да се разпадне. Физически смисъл има



Фигура II.10: Зависимост на параметрите  $B(T)$  и  $\beta(T)$  (уравнение II.5) от температурата. Фигурата е от литература [16].

величината  $\frac{1}{\beta(T)}$  - това е така наречената дължината на дифузия  $L_D$  [74]. Тя има смисъл на средното разстояние, което изминава един атом в поликарбоната преди да се разпадне (виж Приложение А). Теоретично описание на процеса на абсорбция на радон в поликарбонати е направено в литература [75], като с помощта на разработен модел е получен явният вид на функцията  $CF(d)$  (II.5). (В настоящата работа същата функция е използвана за описание на дълбочинното разпределение на трековете в детектори, облъчени във вода за дълбочини  $d \geq 65 \mu\text{m}$  - виж част IV.2.1. )

Зависимостта на коефициента  $\beta(T)$  от температурата може да бъде използвана за оценка на температурата на облъчване. Ако в две парчета от един облъчен детектор, трековете се проявят на две различни дълбочини под повърхността  $d_1$  и  $d_2$ , то уравнение (II.5), приложено за калибровъчните коефициенти на тези дълбочини е:

$$CF(d_1) = \frac{n_1}{I_V} = B \exp(-\beta d_1), \quad (\text{II.6})$$

$$CF(d_2) = \frac{n_2}{I_V} = B \exp(-\beta d_2). \quad (\text{II.7})$$

От горните уравнения  $\beta$  може да се изрази чрез „измеряеми“ величини:

$$\beta = \frac{\text{Ln} \left( \frac{n_1}{n_2} \right)}{d_2 - d_1}. \quad (\text{II.8})$$

Неопределеността в оценката на  $\beta$  зависи от статистическите неопределености на  $n_1$  ( $\sigma_{n_1}$ ) и  $n_2$  ( $\sigma_{n_2}$ ) и от неопределеността на дълбочините  $d_1$  и  $d_2$  ( $\sigma_d = \sigma_{d_1} = \sigma_{d_2}$ ) по следния начин:

$$\frac{\sigma_{\beta}^2}{\beta^2} = \frac{\frac{\sigma_{n_1}^2}{n_1^2} + \frac{\sigma_{n_2}^2}{n_2^2}}{\left( Ln \left( \frac{n_1}{n_1} \right) \right)^2} + \frac{2\sigma_d^2}{(d_2 - d_1)^2}. \quad (\text{II.9})$$

В литература [16] е показано, че при  $d_1 = 80 \mu\text{m}$  и  $d_2 = 180 \mu\text{m}$  и статистическа неопределеност на плътността на трековете от 10%, и при неопределеност на дълбочините  $\pm 3 \mu\text{m}$ , коефициентът  $\beta$  може да се оцени със следните неопределености: при 5°C - 7.3 %, при 19.5°C - 8.4 % и при 38°C - 14.4 %. За конкретния пример, зависимостта показана на Фиг. II.10 е използвана за оценка на неопределеността, с която може да бъде оценена температурата. Тя е: при 5°C - 5.1 %, при 19.5°C - 4.4 % и при 38°C - 2.6 % [16].

Познаването на стойностите на  $\beta$  и  $B$  при различни температури (в интервала, наблюдаван в обитаеми помещения) позволява да се приложи корекция към калибровъчния коефициент. В литература [75] е показано как с помощта на теоретичен модел калибровъчният коефициент може да бъде пресметнат за различни температури в интервала 5÷38°C.

Първоначалните изследвания са показали, че прилагането на температурна корекция позволява провеждането на много точни ретроспективни измервания на радон - с неопределеност до 10% [16]. За целта е необходимо да се обработят поне две полета от диска, в които трековете да бъдат проявени на различни дълбочини. Дори без температурна корекция неопределеността на обемната активност на радона е типично около 20%, тоест е по-ниска или близка до тази на останалите методи за ретроспективни измервания. Подробно сравнение между CD-метода и прилаганите до момента методи за ретроспективни измервания е направено в следващата част.

## II.4 Сравнение между ретроспективните методи

В таблица II.3 е направено сравнение между характеристиките на методите за ретроспективни измервания на радон. На база на формулираните в част II.1.3 критерии може да се оцени приложимостта на методите за епидемиологични проучвания. Както се вижда от таблицата, достатъчно дълъг период назад във времето обхващат всички методи без метода на лещите на очилата. С ниска неопределеност се характеризират VT-метода и CD-метода, но първият отстъпва по отношение на цена и сложност на измерванията. На най-важните критерии в най-голяма степен отговаря CD-метода - той е точен и надежден, с проста методология и ниска цена. Това го прави подходящ за мащабни изследвания както на дозиметрични, така и на лъчезащитни проблеми. Методът отговаря и на повечето от останалите критерии. Позволява измервания в широк диапазон от обемни активности



на радона и използва дискове, които обикновено се пренасят със собственика си в случай на смяна на жилище. Както е показано в следващата част, методът позволява и да се регистрират резки промени в обемната активност, настъпили в миналото. Недостатъци на CD-метода са, че не позволява измервания в различни стаи в жилища (освен в редки случаи) и че не дава информация за активностите на ДПР. В бъдеще би могла да се изследва възможността за постигане на по-точни оценки на риска при комбиниране на CD-метода с ST-метода и/или метода на лещите на очилата.

	Метод			
	На имплантираното $^{210}\text{Pb}$	На обемните уловки	На лещите на очилата	Компакт-диск
<b>1. Предмет</b>				
а) Тип	Стъклени повърхности (подбрани внимателно)	Пълнежи на матраци и мебели	Лещи на очила	Дискове - CD и DVD
б) Възраст	Неограничена	до 20-30у	до 5у	Масово на пазара от около 20у
в) Независима проверка на възрастта	Възможна за някои предмети като рамки на снимки	Практически невъзможна	Обикновено датата на закупуване е известна точно	*Понякога е възможна по запис или дата на производство
г) Наличност в:				
- жилища	Да, в повечето стаи	Да в спалня, дневна и др.	Заедно с човека	Да, обикновено в една стая
- обществени сгради	В офиси, детски градини, училища и т.н.	Понякога	-	В офиси, детски градини, училища и т.н.
д) Премества ли се при смяна на жилище?	Някои предмети като рамки на снимки да	Понякога	-	Да
е) Разрушава ли се при анализа?	Не	Да и има сравнително висока цена	Да, но може да се използват лещи, на които предстои смяна	Да, но има ниска цена, а информацията често може да се копира
<b>2. Методология</b>				
а) Сигналът е свързан с	ДПР, отлагали се по повърхностите	Радон във въздуха	ДПР и радон във въздуха между лицето на човека и очилата	Радон във въздуха
б) Необходима информация за оценка на $\overline{A_V}$ на $^{222}\text{Rn}$	За възрастта на предмета, навигите на обитателите за пушене, проветряване, отопление и т.н.	Само за възрастта на предмета	Предположение за $F$ , за навигите на носещия очилата и т.н.	Само за възрастта на предмета
в) Индивидуално калибриране	Не могат да се повторят условията на облъчване	Би продължило поне година, заради времето за натрупване на $^{210}\text{Po}$	Може да се приложи след събиране на лещите ( <i>a posteriori</i> )	*Може да се приложи след събиране на дисковете ( <i>a posteriori</i> )
г) Типична неопределеност	50-70%	Около 30%	Не е оценена	*Типично 20 % без температурна корекция
д) Максимална грешка	В порядъци	В редки случаи, когато материалът е рециклиран, но може да е значителна	Не е оценена	*60% за нови дискове с висока неопределеност на възрастта
е) Диапазон за 10у	$>100 \text{ Bq.m}^{-3}$	$>100 \text{ Bq.m}^{-3}$	-	* $>7 \text{ Bq.m}^{-3}$
ж) Дава ли допълнителна информация за:				
- времеви ход на $A_V$	Косвена информация за риска, претеглен за изминалото от облъчването време	Не е изследвано	-	*Позволява груба оценка на $\overline{A_V}$ за периодите, в които рискът е различен
- ДПР	Хипотеза, че сигналът корелира с $f_p$	Не	Не е изследвано	Не
<b>3. Приложимост за масови проучвания</b>				
а) Организация	Поне 2 посещения на място	Поне едно посещение на място	Възможно е дистанционно изпращане	Възможно е дистанционно изпращане
б) Цена на анализа	Ниска	Относително висока	Ниска	Ниска
в) Необходима апаратура	За ецване и броене на трекови детектори	Радиохимична лаборатория, апаратура за алфа-спектрометрия	За ецване и броене на трекови детектори и задължително за калибриране	За ецване и броене на трекови детектори и препоръчително за калибриране чрез облъчване с $^{222}\text{Rn}$
г) Време за анализ	Няколко месеца, паралелно	Няколко дни за всяка проба, последователно	Няколко дни за калибриране, паралелно	*Няколко дни или един месец при калибриране, паралелно

Таблица II.3: Сравнение между методите за ретроспективни измервания на  $^{222}\text{Rn}$ . Литературните източници са цитирани в части II.2 и II.3. Полетата, маркирани с „\*“ са на база изследвания, представени в глава III.

## Глава III

# Развитие на компакт-дисквия метод. Резултати от реални измервания.

Направеното сравнение недвусмислено показва, че компакт-дисквият метод има най-голям потенциал за масови ретроспективни измервания на  $^{222}\text{Rn}$  в сгради. Затова първата цел на настоящата дисертация е да се оптимизира методологията, така че CD-методът да е готов за прилагане при мащабни проучвания. Работата по реализиране на тази цел е представена в настоящата глава.

Прилагането на CD-метода в лаборатория „Дозиметрия и лъчезащита“ започна през 2005 година. Част от установените проблеми са свързани с факта, че дисковете не са специално произведени трекови детектори. Първоначалните изследвания имаха за цел тестване на избраните процедури за проявяване на трековете и на новоразработената апаратура върху голям брой различни дискове. Тествани са и различни подходи за броене на проявените трекове. Поради специфичните особености на електрохимично ецваните трекове и това, че се обработват използвани дискове, се наложи разработване на нов алгоритъм за броене.

Освен това, бе необходимо дисковете да се калибрират, като се осигури проследимост до международен стандарт. Както авторите на метода са коментирали, CD-методът позволява индивидуално калибриране на дисковете след събирането им от собствениците. Това би било необходимо в случай, че съществуват значими разлики между калибровъчните коефициенти на различните дискове. Една от целите на представените в тази работа изследвания е да се установи в какви рамки са съществуващите разлики между дисковете.

Оценени са и източниците на неопределеността на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$ , както и диапазона от измеряеми активности. Тъй като при ретроспективните измервания по дефиниция фоновият сигнал (т.е. сигналът, натрупан преди придобиване на предмета)

е непознаваем, е изследван сигналът в голям брой нови дискове. На база на това е оценена средната фонова плътност и големината на възможните грешки.

За да се тестват разработените процедури и да се изследват пълните възможности на метода, са проведени реални измервания с дискове, облъчени в жилища и обществени сгради. Направено е сравнение с измервания чрез проспективни методи. Проверена е и възпроизводимостта на резултатите при използване на няколко диска с различна възраст и марка от едно жилище. Изследвано е съответствието между датирането на дисковете от собствениците и на база на записи или маркирана дата на производство. Тествана е възможността за регистриране на резки промени в обемната активност на радона, настъпили в миналото. Адресирани са и организационни проблеми, свързани с готовността на хората да предоставят дискове и с възможността за дистанционно събиране.

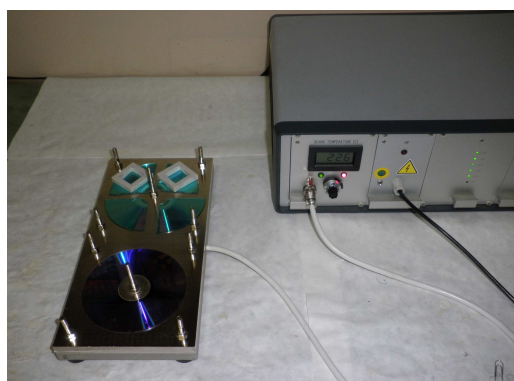
В следващите части са разгледани резултатите от работата върху всеки от етапите на метода, последвани от реалните измервания и обобщена схема за прилагане на метода при мащабни проучвания.

## III.1 Проявяване на трековете в дискове.

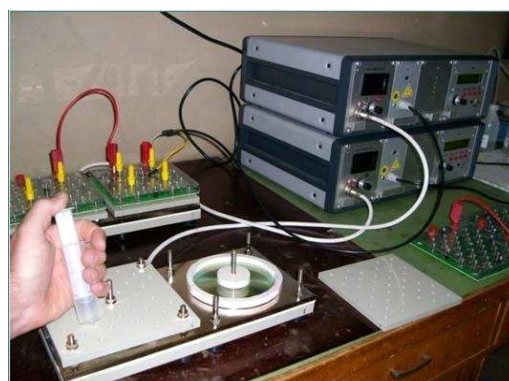
Процедурата, която използваме за проявяване на трековете на определена дълбочина в CD-та/DVD-та, включва преецване и ецване. При преецването от повърхността се отнема слой с определена дебелина, за да се достигне дълбочината, на която трябва да бъдат проявени трековете. При ецването се реализира същинското проявяване на трековете (т.е. увеличаване на размерите им).

### III.1.1 Подготовка на дисковете

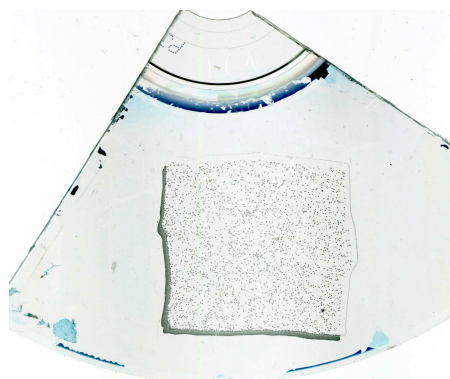
При използваната процедура подготовката на дисковете се състои само в отрязване на парче от диска (обикновено четвъртинка, като остава достатъчно голяма част за допълнителни ецвания). Металното фолио върху предната страна на компакт-дисковете може да не се отстранява преди преецването, но е необходимо да се отстрани преди броенето. Необходимо е дигиталните дискове (DVD), които се състоят от два отделни диска, между които е металното фолио, да бъдат разделени преди ецването. Дебелината на парчетата от компакт дисковете е типично около  $1100 \div 1200 \mu\text{m}$ , а на парчетата от дигиталните дискове след разделянето е около  $550 \div 600 \mu\text{m}$ .



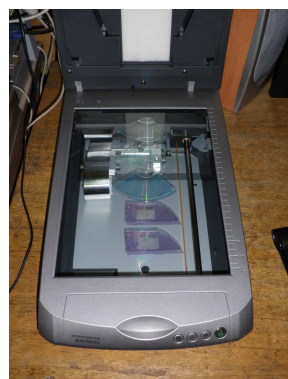
(а)



(б)

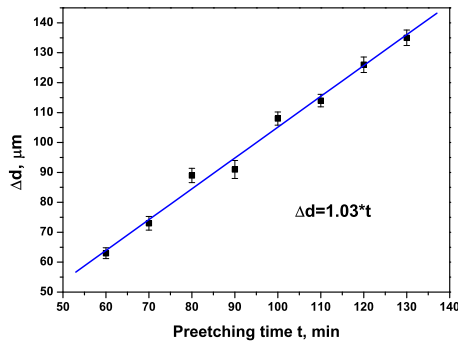


(в)



(г)

Фигура III.1: Етапи от проявяването на трековете в дискове и подготовката им за броене: (а) Парчета от дискове и цял диск, наредени за ецване върху температуращата плоча, която се използва при преецване и при ецване. Върху две от парчетата са поставени маски, в които се сипва химическия разтвор. При ецване на плочата се подава нулев потенциал; (б) Инжектиране на разтвор в маските (преден план). Протичащо електрохимично ецване (заден план) - в разтвора над дисковете са потопени електроди, като напрежението се подава между тях и плочата. (в) Парче от диск, върху което се виждат проявените трекове; (г) Ецвани парчета от дискове, поставени за сканиране.



Фигура III.2: Зависимост между дебелината на отнетия от повърхността слой и продължителността на ецването, получена чрез ецване на парчета от дискове Verbatim от една и съща опаковка.

### III.1.2 Преецване

Преецването представлява отнемане на повърхностен слой с определена дебелина под действието на химически разтвор. Повърхностният слой трябва да бъде отнет без да се проявяват трековете в него. Избрали сме преецването да се провежда при температура 30°C със смес от калиева основа, вода и метанол в масови съотношения 1:0.937:0.702 [76]. За постигане на възпроизводимост на преецването, водният разтвор на КОН се приготвя предварително в голямо количество (няколко литра), което е достатъчно за обработката на няколкостотин диска. Разтворът се приготвя в съд, поставен в лед, за да се намали изпареното количество. Непосредствено преди всяко преецване към необходимото количество разтвор на КОН се добавя  $\text{CH}_3\text{OH}$ . Направеният разтвор на КОН може да се използва поне 3 месеца, стига да не се забележи намаляване на скоростта на ецване.

На Фиг. III.2 е представена зависимостта на отнетия слой от продължителността на ецване, получена за дискове от една партида. Както се вижда, в диапазона на изследваните стойности, тази зависимост е линейна и показва, че повърхността се разтваря със скорост около  $60 \mu\text{m} \cdot \text{h}^{-1}$ . Макар че при повечето дискове скоростта на преецване е близка до тази стойност, трябва да се има предвид, че има такива, при които сме наблюдавали различна скорост (до 30÷40 % по-ниска и по-рядко до 10÷20 % по-висока). Затова отнетата дебелина винаги се контролира чрез измерване с микрометър с точност  $\pm 1 \mu\text{m}$ .

Дълбочината, на която се проявяват трековете се определя чрез измервания на дебелината на диска преди и след ецването. Провеждаме по 5÷10 измервания в различни точки от преецваната площ (която типично е 4÷5  $\text{cm}^2$ ). Стандартното отклонение на дебелината на отнетия слой, получено при измерванията приемаме за неопределеност на отнетата дебелина  $\sigma_d$ . Обикновено  $\sigma_d = 1.5 \div 3 \mu\text{m}$ , което е повече от инструменталната неопределеност. Това се дължи на неравности по повърхността, които се наблюдават след преецването.

### III.1.3 Ецване

Ецване се извършва върху вече преецваната повърхност (т.е. след като от нея е отнет повърхностен слой с необходимата дебелина). Времето между ецването и преецването трябва да е минимално, за да се избегне формиране на нови трекове (от алфа-лъчители във въздуха) върху преецваната повърхност. Процесите на формиране на първоначалния трек и на проявяването му са разгледани в литература [66, 67]. Регистрационните характеристики на детектори Макроfol<sup>®</sup>, ецвани чрез близка до използваната от нас процедура са изследвани в литература [72]. Тук процедурата на ецване е описана, като етап от обработката на дисковете.

Процедурата, която използваме за проявяване на трековете в дискове е електрохимично ецване (ЕСЕ). При него освен химически разтвор, върху детекторите се прилага променливо електрично поле с висока честота и амплитуда. Процедурата е базирана на публикувана процедура за електрохимично ецване на трекове от алфа-частици в поликарбонати [73]. Тя се прилага при измервания на радон и е показано, че е подходяща за проявяване на трекове от алфа-частиците на радона и дъщерните му продукти в поликарбонати [73]. Както и в процедурата, разгледана в литература [73], използваният от нас разтвор представлява смес от етанол със 6-моларен разтвор на калиева основа в обемно отношение 1:4, а температурата при ецването е 25°C. Разтворът се прилага върху детекторите 30 минути преди да бъде подадено напрежение. След това се прилага електрично поле с честота около 6 kHz и с такава ефективна стойност на напрежението, че да се осигури интензитет на полето в диска  $E = 3 \text{ kV} \cdot \text{mm}^{-1}$  (за процедурата в [73]  $E = 2.67 \text{ kV} \cdot \text{mm}^{-1}$ ). Ецването продължава 3 часа след прилагане на електричното поле.

За електрохимичното ецване на дисковете се използват установки, изработени по наш проект от Ekotronik Ltd. Те включват високоволтов генератор с ефективна стойност на напрежението в интервала 100÷4000 V (променливо) и с фиксирана работна честота около 6 kHz и проводяща плоча с вграден нагревател, който може да поддържа постоянна температура между 25÷40°C. Снимки на установката, както и на основните етапи от ецването, са показани на Фиг. III.1а и III.1б. Специфичното на тази установка е, че генераторът може да осигурява достатъчно високо променливо напрежение, за да могат да се обработват компакт-дискове без да е необходимо предварителното им изтъняване. Предварително механично изтъняване се е налагало при първоначалните лабораторни изследвания на метода [16], тъй като наличните установки са били предназначени за детектори с дебелина до 300  $\mu\text{m}$ . Една установка позволява едновременно ецване на детектори с обща площ до 300  $\text{cm}^2$ . При ецване на четвъртинки от дискове едновременно могат да се ецват 8-10 детектора. Тъй като понастоящем разполагаме с три установки, капацитетът

на лабораторията е до 30 диска на ден.

Причината да изберем ЕСЕ пред химичното ецване, е че проявените трекове са по-контрастни и с по-големи размери (размерът на химично ецвани трекове от алфа-частици е от порядъка на няколко  $\mu\text{m}$ , а на електрохимично около  $100 \mu\text{m}$ ). Това са съществени предимства при броенето на трековете. Недостатъците на тази техника са свързвани отново с по-големия размер на трековете - той води до по-голяма вероятност за припокриване между трековете в сравнение с химичното ецване. Освен това, съществуват изследвания, според които при висока плътност на първоначално формираните трекове част от тях не се проявяват при ЕСЕ, поради локално намаляване на интензитета в близки трекове [77]. В литературата е посочено, че този ефект се наблюдава при плътности на трековете, надвишаващи  $3 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-2}$  [77, 78, 79], но резултатите са получени при съществено различни от нашите условия на облъчване и ецване. В бъдеще сме планирали да изследваме този ефект при конкретната процедура за ЕСЕ. Считаме, че посочените недостатъци не са пречка за прилагане на CD-метода в комбинация с ЕСЕ. Както е показано в част III.4.3, големите плътности на трековете могат да се избегнат, като се работи на по-големи дълбочини, където трековете са по-малко. В следващата част е показано как разработеният от нас алгоритъм за броене разделя припокриващи се трекове.

## III.2 Броене на трекове в дискове.

Техниките за броене на трекове в твърдотелни детектори на следи най-общо могат да се разделят на „ръчни“ и автоматични. При първите е съществено участието на оператора, който преброява трековете един по един. Обикновено броенето се извършва директно през оптичен микроскоп или върху проектирано изображение на детектора. Една от техниките за броене на трекове в компакт-дискове, която сме използвали е именно „ръчно“ броене с помощта на оптичен микроскоп. Основните недостъци на „ръчното“ броене са, че е много времеемко и натоварващо и изисква наличието на опитен оператор. За да бъде CD-метода по-лесен и по-ефективен, се насочихме към автоматично броене.

Съществуват голям брой методи за автоматично и полу-автоматично броене на трекове в твърдотелни детектори, използващи различни физични подходи (например искрово броене [80], фотометрия [81], нарушено пълно вътрешно отражение на лазерна светлина [82] и т.н.). Част от тези подходи са систематизирани в литература [83]. Понастоящем, най-използвани са методите, позволяващи дигитализиране на изображението на детектора. Те обикновено използват сравнително скъпи комерсиални системи [84, 85, 86, 87] или самоделни системи, базирани на куплиране на CCD или видео камера към опти-

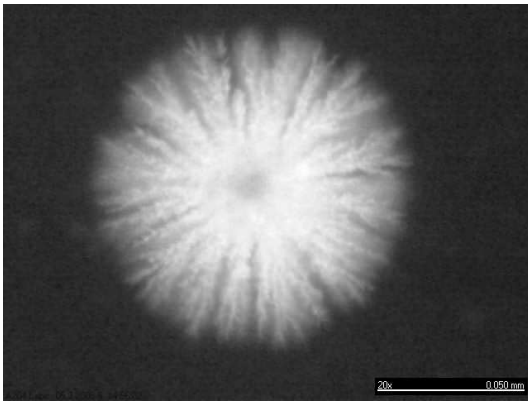


чен микроскоп. За анализ на дигиталните изображения се използва както готов софтуер за анализ на изображения [88, 89, 90], така и специално разработен за целта софтуер [91, 92, 93, 94, 95, 96] (който обикновено има по-големи възможности за „разпознаване“ на структурата и формата на трековете).

Един от методите, работещ с дигитални изображения, се реализира чрез сканиране на повърхността на детектора с достъпен на пазара компютърен скенер [88, 97]. Тази техника е евтина, проста и значително по-бърза от „ръчното“ броене. В добавка, тя позволява запазване на сканираните изображения. Първоначално приложихме този метод за автоматично броене на химично ецвани трекове от алфа-частици в детектори Makrofol и Kodak-Pathe LR-115/II, като за броене на трековете беше използван разработен за целта софтуер [97]. По-късно методът на сканиране в комбинация със софтуер за анализ на астрономически изображения бе използван от други автори при провеждане на радоново проучване [98]. На база на дългогодишен опит с химично ецвани трекове в детектори CR-39, прилагани за проспективни измервания на радон, в Health Protection Agency (HPA, UK) е направено подробно изследване на метода на скенерното броене [99]. То включва тестове за контрол на качеството и показва, че използването на скенер дава надеждни резултати.

В литературата са предложени малък брой алгоритми за броене на електрохимично ецвани трекове [98, 100]. Плътността на трековете, до която са приложими тези алгоритми, е не по-голяма от  $1000 \text{ cm}^{-2}$ . Това показва и нашият опит с програмата ImageJ [101], която при по-големи плътности на трековете не успява да раздели допиращите се трекове. Директното прилагане на съществуващите алгоритми към сканирани изображения на електрохимично ецвани трекове в дискове не дава добри резултати. Една от причините е, че трековете са сравнително големи и имат специфична дървовидна структура. Снимка на ЕСЕ трек, получена с микроскоп и куплирана към него CCD камера е показана на Фиг. III.3. Тази структура затруднява разделянето на близкостоящи трекове при броенето. Другата причина са драскотините по повърхността, които винаги са налице при дискове, използвани за ретроспективни измервания. Част от драскотините се проявяват при преецването и ецването и пораждаат артефакти в изображението, които трябва да бъдат игнорирани от алгоритъма за броене.

Затова си поставихме за цел да разработим ефективен алгоритъм за автоматично броене на електрохимично ецвани трекове в CD/DVD-та, който да се справя с горепосочените проблеми. В тази част е дадено описание на принципните стъпки на алгоритъма. За голям брой дискове е направено сравнение между автоматично и „ръчно“ броене с микроскоп. Алгоритъмът е тестван както върху нови дискове, така и върху дискове, из-



Фигура III.3: Снимка на електрохимично ецван трек от алфа-частица, направена с CCD камера, куплирана към микроскоп. Ясно видима е специфичната дървовидна структура.

ползвани при реални ретроспективни измервания на радон в жилища или при измервания на радон в почвен газ и във води. Алгоритъмът е публикуван в литература [102, 103].

### III.2.1 Описание на алгоритъма за автоматично броене

След проявяване на треките ецваната част от повърхността на диска се сканира чрез компютърен скенер (в представените тук примери е използван скенер Epson Perfection 3170). Сканира се в режим на преминала светлина и разделителна способност 3200x3200 dpi<sup>1</sup>, като се изключват всички опции за подобряване на изображението<sup>2</sup>. Изображението се запазва в 24-битов bitmap<sup>3</sup> формат. Пример за такова изображение е показан на Фиг.III.4а. След това, изображението се трансформира в 8-битов grayscale<sup>4</sup> формат (Фиг.III.4б), като интензитетът  $I$  на всеки пиксел се пресмята като:

$$I = \sqrt{\frac{R^2 + G^2 + B^2}{3}}, \quad (\text{III.1})$$

където  $R$ ,  $G$  и  $B$  са съответно червената, зелената и синята компонента на цвета на пиксела. Изключение от горното правило за определяне на  $I$  се прави за дискове, в които един от трите цвята (червен, зелени или син) преобладава. При тях стойността на  $I$  се приравнява на стойността на преобладаващата компонента. Дисковете с черен цвят се сканират в отразена светлина, като се работи с негатив на образа (сканирано изображение на черен диск е показано на Фиг.III.5).

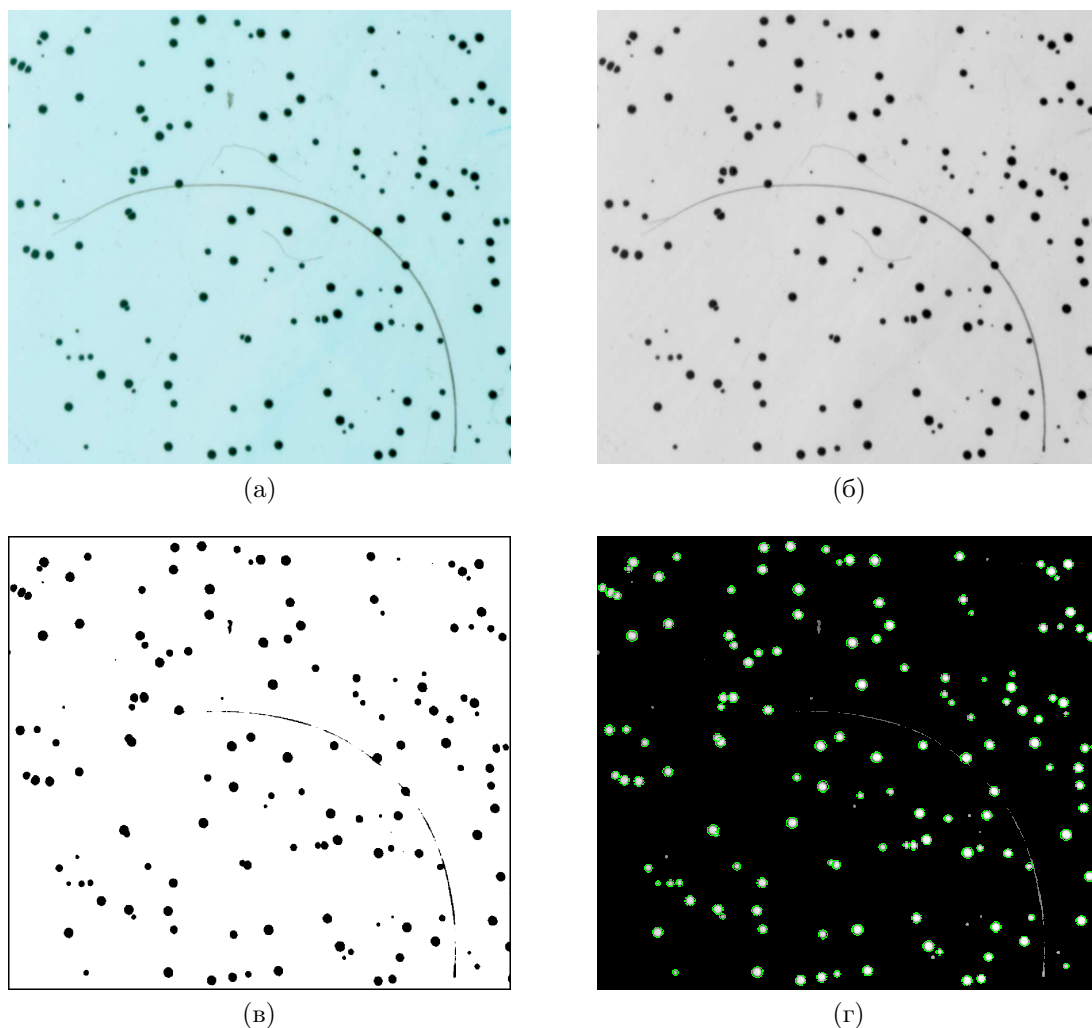
Алгоритъмът, който се прилага върху grayscale изображението, се състои от

<sup>1</sup>DPI(Dots Per Inch) - пиксела (точки) на инч. 3200 dpi съответства на около 1260 пиксела на 1 cm, а площ от 1 cm<sup>2</sup> се изобразява с около 1.6x10<sup>6</sup> пиксела.

<sup>2</sup>Като например опцията „Dust Removal Filter“, включването на която води до по-малко преброени трекове.

<sup>3</sup>Bitmap(BMP)- файлов формат за съхранение на растрерна графика. В 24-битов формат (или още RGB формат) всяка от цветните координати (червено, зелено и синьо) има 256 възможни стойности.

<sup>4</sup>8-битов grayscale формат - графичен файлов формат, при който се използват 256 стойности на интензитета на сивия цвят.



Фигура III.4: Основни стъпки на алгоритъма: (а) Сканирано изображение на ецван диск. В средата се вижда голям артефакт, а около него няколко по-малки; (б) Същото изображение в grayscale формат; (в) Изображението след прилагане на фоновия филтър. В черно са изобразени обектите, а в бяло фона; (г) Резултат от прилагането на алгоритъма (представен е негатив). Преброените трекове са оградени със зелени кръгове, фонът е премахнат, а артефактите не са преброени, поради асиметричната им форма или малкия им размер. В представения пример са използвани стойностите на зададените от потребителя параметри, препоръчани в текста.



Фигура III.5: Сканирано изображение на черен диск. Преди броенето се превръща в негатив.

няколко прости процедури. Те са:

- Премахване на фона в изображението.
- Идентифициране на обектите.
- Идентифициране на трековете (сливане на обектите в трекове и отстраняване на артефакти).

Подробно описание на процедурите е направено по-долу.

### III.2.1.1 Премахване на фона в изображението - фонов филтър

Първата важна задача на алгоритъма е надеждно да идентифицира пикселите, които са част от обекти (трекове или артефакти) и не са част от фона. Това е обичаен проблем при обработването на изображения и съществуват разнообразни техники за поставяне на праг на интензитета, чрез който се филтрират фоновите пиксели. Подробно разглеждане на такива техники заедно с количествени оценки за успеваемостта им е направено в литература [104]. При разработване на предлагания от нас алгоритъм са тествани два прости подхода за избор на праг. При първия интензитетът на всеки пиксел ( $I_p$ ) се сравнява със средния интензитет на всички пиксели в изображението - това е така нареченият глобален филтър. При другия подход се прилага локален филтър - интензитетът на всеки пиксел се сравнява със средния интензитет ( $I_{avg}$ ) на пикселите, намиращи се в определена област около този пиксел. Тестовите с изображения на дискове показаха, че глобалният филтър работи по-зле от локалния, тъй като фонът на изображенията обикновено е нехомогенен (основно поради химичното преецване). Този извод не е неочакван, тъй като техниките, използващи локален праг, са в много случаи по-ефективни при отделянето на обекти от фона (виж например литература [105]). Освен това, при големи плътности на трековете ( $>1000 \text{ tr.cm}^{-2}$ ) усредненият по всички пиксели интензитет става сравним с интензитета на някои от обектите (истинските трекове) и те не могат да бъдат различени от фона. Локалният филтър се справя с тези трудности в случай, че размерите на полето ( $w_{I_{avg}}$  и  $h_{I_{avg}}$ ), за което се пресмята ( $I_{avg}$ ) са достатъчно малки, за да гарантират приблизително хомогенен фон. От друга страна, тези размери трябва да надвишават поне 3-4 пъти средните размери на трековете. В разработената програма  $w_{I_{avg}}$  и  $h_{I_{avg}}$  се определят чрез входящ параметър, задаван от потребителя (по-долу са дадени препоръчителни стойности на входящите параметри). Счита се, че един пиксел принадлежи на обект, ако е изпълнено следното условие:

$$I_p > C_{\text{thold}} * I_{\text{avg}}, \quad (\text{III.2})$$

където  $C_{\text{thold}}$  е зададен от потребителя входящ параметър. Ако горното условие не е удовлетворено, пикселът се счита за част от фона. Фиг .III.4в илюстрира резултата от прилагането на локалния филтър. Черните пиксели формират обектите (наричани оттук нататък обектни пиксели), а белите фона. Интензитетът на обектните пиксели не се променя при филтрирането на фона. На края на тази стъпка се определят средният интензитет на фоновете пиксели ( $\bar{I}_{\text{bgr}}$ ) и стандартното отклонение ( $\sigma_{I_{\text{bgr}}}$ ) като:

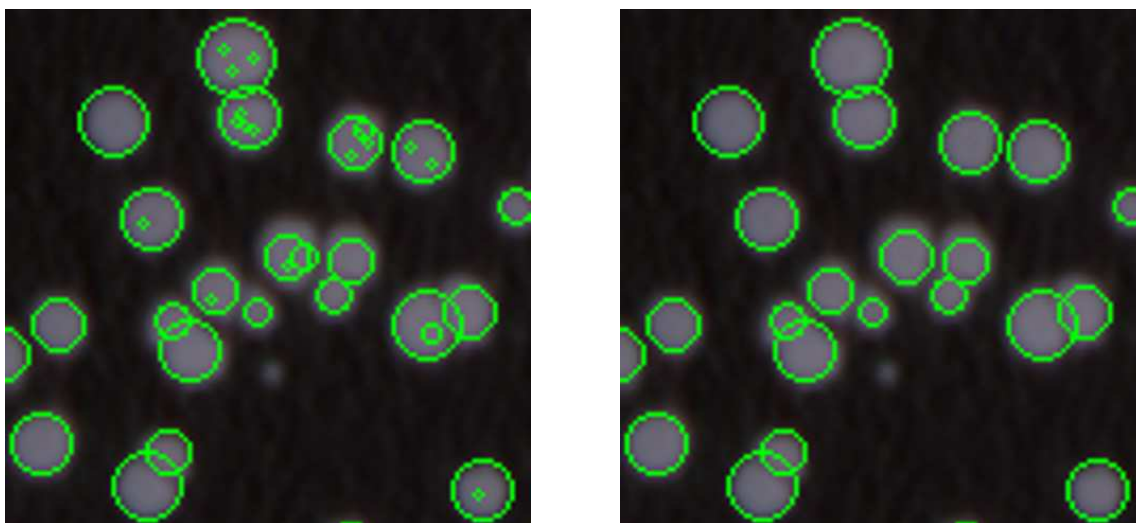
$$\bar{I}_{\text{bgr}} = \frac{\sum_{i=1}^m I_i}{m}, \quad (\text{III.3})$$

$$\sigma_{I_{\text{bgr}}} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^m (\bar{I}_{\text{bgr}} - I_i)^2}{m - 1}}, \quad (\text{III.4})$$

където  $m$  е броят на всички пиксели, идентифицирани като „фонови“, а  $I_i$  е интензитетът на  $i$ -тия фоновок пиксел. Така определените стойности на  $\bar{I}_{\text{bgr}}$  и  $\sigma_{I_{\text{bgr}}}$  са използвани в края на алгоритъма (виж по-долу).

### III.2.1.2 Идентифициране на обекти - обектен филтър

Обектният филтър има за цел да групира обектните пиксели в обекти. Обектът не винаги представлява трек. Драскотините и другите артефакти (ако присъстват в изображението) също ще бъдат идентифицирани като обекти. Процедурата по групирането започва с локализиране на обектния пиксел  $P$ , който е с най-висок интензитет сред всички обектни пиксели. Пикселът  $P$  се приписва на нов обект  $O$ , като  $P$  се приема за „корен“ на обекта  $O$ . Нека, всички обектни пиксели, допиращи се до даден пиксел и имащи по-нисък интензитет от неговия се наричат „деца“ на този пиксел. Обектът  $O$  се формира като към пиксела  $P$  се добавят неговите „деца“, после техните „деца“ и т.н. докато не могат да бъдат намерени пиксели, които да бъдат добавени. Тогава, обектът  $O$  е такъв, че всички пиксели, с които граничи или принадлежат на фона, или имат интензитет по-голям от този на съседните им пиксели, принадлежащи на  $O$ . След като обектът  $O$  е формиран, процедурата се повтаря като се започва от пиксела с най-голям интензитет, принадлежащ на  $O$  и се изгражда нов обект. След това, отново се започва от пиксела с най-голям



Фигура III.6: Илюстрация на резултатите от прилагане на обектния филтър преди (отляво) и след (дясно) прилагане на процедурата за обединяване на обекти в трекове.

интензитет, непринадлежащ към обект и т.н., докато в изображението не останат обектни пиксели, непринадлежащи на някой обект. След края на тази процедура обектните пиксели са групирани в малки клъстър от пиксели, които наричаме обекти.

Предимство на това групиране е, че успешно разделя припокриващи се трекове. Въпреки това, специфичната структура на електрохимично ецваните трекове може да доведе до разцепването на един трек на две или повече части или до идентифицирането на обект(и) вътре в други обекти. Последната ситуация се случва често и е илюстрирана на Фиг. III.6а. Коректното идентифициране на треквете налага да бъдат определени количествени параметри, които характеризират обектите. Параметрите, които се пресмятат за всеки обект, намерен при тази стъпка, са:

1. *Размер на обекта ( $S$ ):* Броят на пикселите в обекта
2. *Център на обекта:* Пикселът с координати  $(x_c, y_c)$ , които се определят от:

$$x_c = \frac{\sum_{p \in O} x_p}{S}, \quad (\text{III.5})$$

$$y_c = \frac{\sum_{p \in O} y_p}{S}, \quad (\text{III.6})$$

където  $p$  обхожда всички пиксели, принадлежащи на  $O$ , а  $S$  е размерът на обекта  $O$ .

3. *Коефициент на симетрия*: Нека  $R$  е нов обект, получен при въртене на обекта  $O$  на ъгъл  $\frac{\pi}{2}$  около центъра му. Нека  $N$  е броят пиксели в сечението на  $O$  и  $R$ . Тогава *коефициентът на симетрия* се дефинира като:

$$Q_{\text{sym}} = \frac{N}{S}. \quad (\text{III.7})$$

4. *Брой периферни пиксели*: Броят на пикселите в обекта, които имат поне един съседен пиксел, принадлежащ на обекта.
5. *Сумарен интензитет*: Сумата от интензитета на пикселите в обекта.
6. *Максимален интензитет ( $I_m$ )*: Интензитетът на пиксела с най-голям интензитет в обекта.

### III.2.1.3 Идентифициране на трекове - обединяване на обекти в трекове и премахване на артефакти.

Както е споменато по-горе, прилагането на обектния филтър често води до сегментиране на трекове на по-малки обекти. Целта на описаната тук процедура е да обедини обектите, които принадлежат към един и същ трек, за да се избегне преброяването им като отделни трекове. Едновременно с това, процедурата трябва да не обединява близки или припокриващи се трекове. Различни критерии могат да бъдат приложени към параметрите, характеризиращи обектите, за да се осъществи обединяването. В разработения алгоритъм два съседни обекта се обединяват, когато следните условия са изпълнени едновременно:

1. Единият от двата обекта да има по-голям *размер* и по-голям *сумарен интензитет*.
2. *Коефициентът на симетрия* на новия обект, получен след обединението, е по-голям (или равен) от *коефициента на симетрия* на обекта с по-голям *размер* и по-голям *сумарен интензитет*, измежду двата начални обекта.
3. *Броят периферни пиксели* на новия обект е по-малък (или равен) от *броя периферни пиксели* на обекта с по-голям *размер* и по-голям *сумарен интензитет*, измежду двата начални обекта.

Когато горните условия са изпълнени, двата обекта се заместват с новия обект. Параметрите на новия обект се пресмятат и процесът на обединение продължава със следващите два обекта. Опитът с електрохимично ецвани трекове в дискове показва, че горните критерии за сливане дават надеждни резултати в широк диапазон от плътности

на трековете (дори при наличието на голям брой артефакти). Типичен пример за изображение след прилагане на процедурата за обединяване на обекти е показан на Фиг. III.6 (отдясно). Както се вижда, малките обекти вътре в трековете са обединени успешно, като припокриващите се трекове са останали разделени. След прилагане на тази процедура, идентифицираните в изображението обекти са или трекове или артефакти.

В следващата стъпка алгоритъмът идентифицира артефактите сред обектите. Един обект се счита за артефакт, ако отговаря на поне едно от следните условия:

1. *Размерът на обекта* е по-малък от  $C_{\text{size}}$ , където  $C_{\text{size}}$  е входящ параметър, зададен от потребителя.
2. *Коефициентът на симетрия*  $Q_{\text{sym}}$  на обекта е по-малък от зададен от потребителя параметър  $C_{\text{sym}}$ .

Прилагането на първото условие води до отхвърляне на малки флукуации на фона, а на второто до отхвърляне на обекти с голяма асиметрия (каквите обикновено са драскотините по повърхността на диска).

При последната стъпка на алгоритъма се преброяват идентифицираните трекове. При нея потребителят може да избере праг по интензитет, над който разпознатите обекти да се преброят като трекове. Условието се прилага спрямо *максималния интензитет* по следния начин:

$$I_m > \bar{I}_{\text{bgr}} + k\sigma_{I_{\text{bgr}}}, \quad (\text{III.8})$$

където  $k$  е зададен от потребителя входящ параметър. Резултатът от прилагане на целия алгоритъм е показан на Фиг. III.4г.

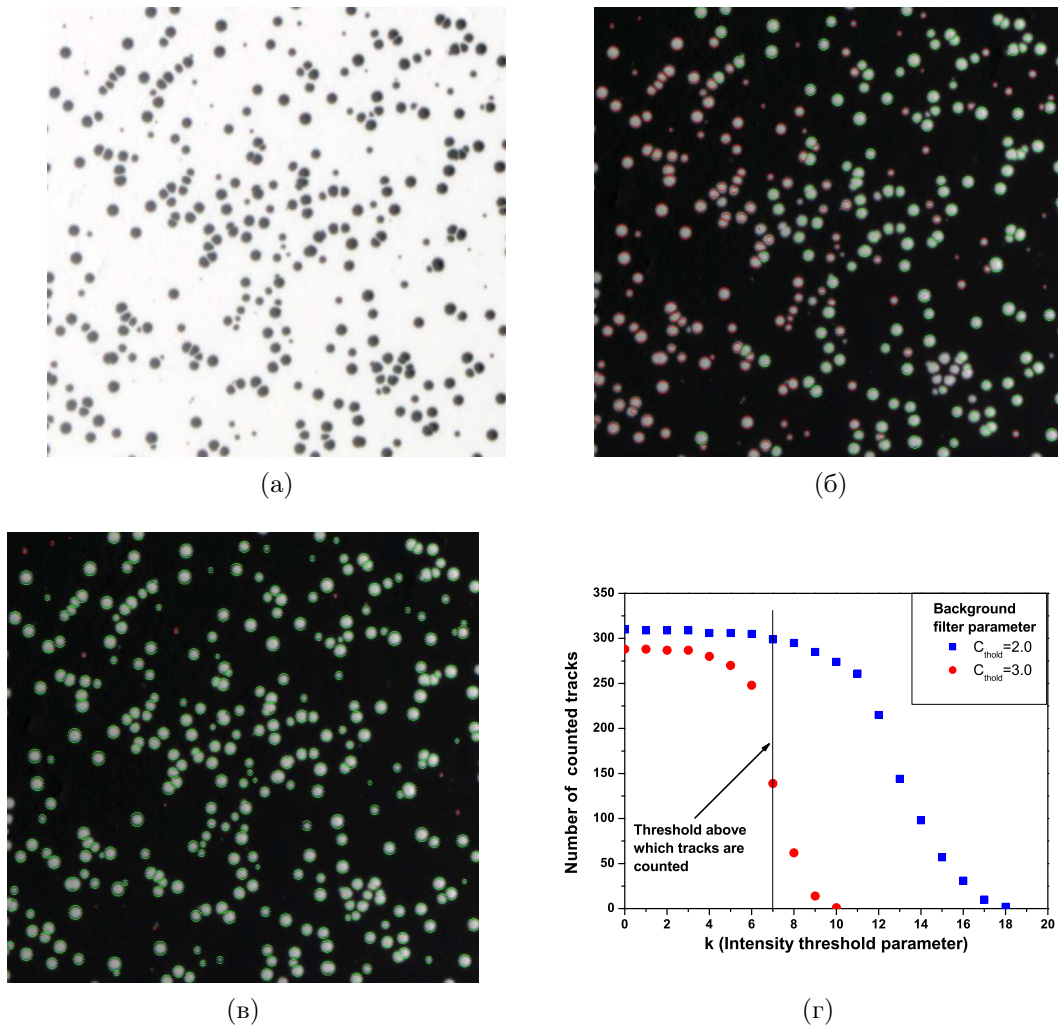
#### III.2.1.4 Избор на входящи параметри и критерии за качеството на броене

На база на гореописания алгоритъм бе разработена компютърна програма, наречена „DG-Track“. Програмата преброява трековете и дава резултат за плътността им, а освен това генерира изображение с маркирани в него трекове за контрол на качеството на броене (Фиг. III.4г). Тя се справя успешно, при условие че входящите параметри са разумно избрани (изображенията представени тук са получени при стойности на параметрите, равни на препоръчаните по-долу). Може да се обобщи, че след като веднъж входящите параметри се изберат правилно, качеството на броене не се влияе съществено от конкретното изображение (т.е. не е необходимо да се задават нови стойности на параметрите за всяко сканирано изображение).



Изборът на стойностите на входящите параметри е итеративен процес, при който резултатите от броене на група детектори (т.нар. „тестови детектори“) се сравняват с резултати, получени при прецизно „ръчно“ броене на същите детектори. Препоръчително е тестовите детектори да са с различни плътности на трековете в интервала  $5 \div 2000 \text{ tr.cm}^{-2}$ . Препоръчително е също, тестовите детектори да са „получени“ по същия начин като детекторите, използвани в практиката, т.е. да са дискове облъчени с  $^{222}\text{Rn}$ , да са обработени по същите процедури за преецване и ецване и т.н. Не е необходимо обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  при облъчване на тези детектори да е точно известна, стига получените плътности на трековете да покриват приблизително еквиливантно горния интервал. Така подготвените тестови детектори впоследствие могат да се използват за периодична проверка на сканирането. Автоматичното броене на тестовите детектори може да се счита за качествено, ако резултатите от него корелират добре с тези от „ръчното“ броене, без да са многократно по-ниски. Добра стратегия е да се започне с препоръчителните стойности на входящите параметри, дадени по-долу. Нашият опит показва, че няколко стъпки са достатъчни за адаптирането на алгоритъма. Препоръчителните стойности на входящите параметри са както следва:

- $C_A = 0.05$  - този параметър, определя размерите на полето, за което се прилага локалният филтър. Ширината на това поле се определя като  $w = C_A W$ , където  $W$  е ширината на цялото изображение в пиксели. Аналогично, дължината се определя като  $h = C_A H$ , където  $H$  е дължината на цялото изображение в пиксели. Препоръчаната стойност е подходяща за изображения с площ  $0.25 \div 5 \text{ cm}^2$  и досега не сме попадали на случай, в който се е налагало да я променяме.
- $C_{\text{thold}} = 3.0$  - този параметър определя прага, над който пикселите се считат за част от обект, при прилагане на локалния фонен филтър (уравнение III.2). При дисковете с висока плътност на трековете и при цветните и черни дискове може да се наложи задаване на по-ниска стойност - в такива случаи обикновено  $C_{\text{thold}} = 2.0$  (по-ниска от тази стойност не води до адекватно филтриране на фона).
- $C_{\text{sym}} = 0.7$  - този параметър, филтрира обектите по форма. Не сме попадали на случай, в който да се е налагало използване на друга стойност.
- $C_{\text{size}} = 0$  - този параметър, определя минималния размер на трековете. За изображения с ниска плътност на трековете ( $< 25 \text{ tr.cm}^{-2}$ ) и много артефакти се избира  $C_{\text{size}} = 50$ . Под „много артефакти“ се разбира, че броят на артефактите е сравним (или по-голям) с този на трековете или че общата площ на артефактите е сравнима (или по-голяма) с общата площ на трековете в изображението.



Фигура III.7: (а) Оригинално сканирано изображение; Илюстрация на контрол на качеството на броене на трековете в изображението: (б) Резултат от преброяване при висок праг на фоновия филтър -  $C_{\text{thold}} = 3.0$ ; (в) Резултат от преброяване при по-нисък праг на фоновия филтър -  $C_{\text{thold}} = 2.0$ ; (г) Зависимост на преброените трекове от прага по интензитет (който зависи от прага на фоновия филтър), получена за случаите (б) и (в). Отбелязан е прагът  $k = 7$ , при който се броят трековете, оградени със зелени кръгчета.

- $k$  - този параметър задава праг по интензитет, над който да се броят трековете (уравнение III.8). Всъщност, програмата оценява броя на трековете за всички цели стойности на  $k$ , които водят до праг не по-голям от максималния интензитет в образа. Както е коментирано по-долу, тази информация се използва за контрол на качеството на броене. Като входящи за програмата параметри се въвеждат две стойности на  $k$  ( $k_1$  и  $k_2$ ), които определят за кои  $k$  да се визуализират резултатите от броенето. Обикновено се избира  $k_2 = 7$  (визуализира се със зелени кръгчета, оградяващи трековете) и  $k_1 = 0$  (визуализира се с червени кръгчета, които се виждат само, ако трекът не е ограден със зелено кръгче).

Дори след установяване на входящите параметри, качеството на броене се контролира от оператор, който преглежда изходните изображения. Една от индикациите за

некачествено броене са значителен брой червени кръгчета. На Фиг. III.7а е показано изходно изображение, а на Фиг. III.7б и III.7в са показани резултатите от преброяването му при две стойности на  $C_{\text{thold}}$ . В единия случай (III.7б) се наблюдават голям брой червени кръгчета, което показва, че броят преброени трекове зависи силно от прага по интензитет, определен чрез параметъра  $k$ . Това се вижда и на III.7г, на която е представена зависимостта на броя трекове от  $k$  за двата режима на броене. Изображението на Фиг. III.7в е резултат от броене на по-нисък праг на фоновия филтър. В него почти не се наблюдават червени кръгчета и зависимостта на броя трекове от  $k$  има плато до  $k \leq 8$ . Широкото плато е индикация за по-качествено броене. Опитът ни показва, че съвпадането на броя трекове (в рамките на неопределеностите) при  $k = 0$  и  $k = 7$  е удачен критерий за това, че не са пропуснати трекове, които би следвало да бъдат преброени. На другия полюс, е възможно преброяване на голям брой обекти, които видимо не са трекове, а се дължат на флукутации на фона или на разцепени артефакти (тъй като, ако артефактите са непрекъснати драскотини, те се филтрират успешно по форма). Обикновено, тези обекти са с малки размери и могат да бъдат ефективно филтрирани по размери.

Както е показано в следващата част, с горните стойности на входящите параметри програмата може да работи в широк диапазон от плътности на трековете.

### **III.2.2 Сравнение между алгоритъма за автоматично броене и „ръчно“ броене чрез оптичен микроскоп**

Програмата „DGTrack“ е вече успешно използвана при стотици измервания на радон чрез CD/DVD-та. Използвана е при броене на трекове в нови дискове, облъчени в лабораторни условия с цел калибриране. Използвана е и за стари и надраскани дискове, съхранявани в жилища за поне няколко години, преди да бъдат събрани за ретроспективни измервания на  $^{222}\text{Rn}$ . Освен това, е използвана за броене на трекове в дискове, облъчени в почвен газ и вода. При последните изследвания способността на поликарбонатния материал на дисковете да абсорбира радон е приложена за проспективни измервания на радон в различни среди (виж например част IV.2). При тези изследвания обработихме голям брой дискове с различни плътности на трековете. Те бяха използвани за сравнение на резултатите от автоматичното и „ръчното“ броене. Освен това, бе направено и сравнение между двете техники по отношение на продуктивност и диапазон от плътности на трековете, за които са приложими.

### III.2.2.1 Сравнение между резултати от броене на трекове в дискове

За да се тества разработеният алгоритъм, 62 CD-та и DVD-та бяха сканирани и преброени автоматично с програмата „DGTrack“ и „ръчно“ с помощта на оптичен микроскоп. Детекторите бяха избрани така, че да покриват целия диапазон от плътности на трековете, които сме срещали при проведените от нас изследвания. Дисковете бяха от различни марки и с различна възраст и са били облъчвани по различен начин. От тях 32 диска са били облъчени в лабораторни условия с цел калибриране, 15 са били използвани за реални ретроспективни измервания на радон в жилища, 5 са били облъчени в почвен газ и 10 във вода. Всички дисковете са били обработени според процедурите, описани в част III.1, в повече от пет различни сесии. Три от използваните детектори са били преецвани до дълбочини по-големи от  $80 \mu\text{m}$  (до  $145 \mu\text{m}$  и до  $185 \mu\text{m}$ ), за да се избегне насищане. Всички детектори бяха сканирани и преброени с програмата „DGTrack“, като качеството на броене бе контролирано от оператор. При 54 от дисковете са използвани препоръчаните стойности на входящите параметри. При 8 детектора (всички с плътност на трековете над  $600 \text{ tr.cm}^{-2}$ ) параметъра  $C_{\text{thold}}$  е бил със стойност 2.0 вместо 3.0. Плътността на трековете  $n_{\text{auto}}$  и нейната относителна неопределеност  $\delta n_{\text{auto}}$  са оценени като:

$$n_{\text{auto}} = \frac{N_{\text{auto}}}{S}, \quad (\text{III.9})$$

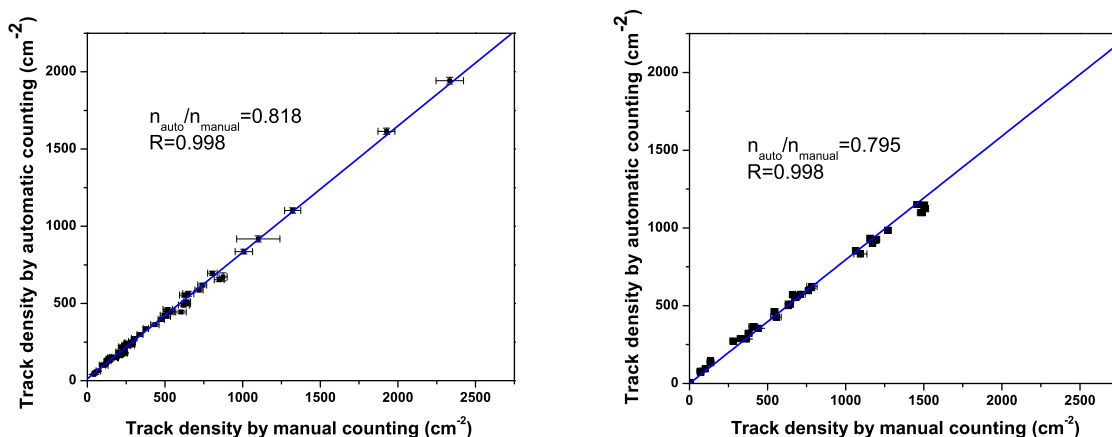
$$\delta n_{\text{auto}} = \frac{1}{\sqrt{N_{\text{auto}}}} = \sqrt{\frac{1}{n_{\text{auto}}S}}, \quad (\text{III.10})$$

където  $N_{\text{auto}}$  е броят на трековете, преброени от „DGTrack“, а  $S$  е площта на сканираното изображение. При оценка на неопределеността е прието Поасоново разпределение.

„Ръчното“ броене е извършено с оптичен микроскоп, работещ с преминала светлина (Nikon Eclipse E200). При всеки детектор бяха преброени по 25 полета. Плътността на трековете  $n_{\text{man}}$  и нейната относителна неопределеност  $\delta n_{\text{man}}$  са оценени като:

$$n_{\text{man}} = \frac{1}{s} \frac{\sum_{j=1}^l N_j}{l}, \quad (\text{III.11})$$

$$\delta n_{\text{man}} = \frac{1}{N_{\text{avg}}} \sqrt{\frac{\sum_{j=1}^l (N_j - N_{\text{avg}})^2}{l(l-1)}}, \quad (\text{III.12})$$



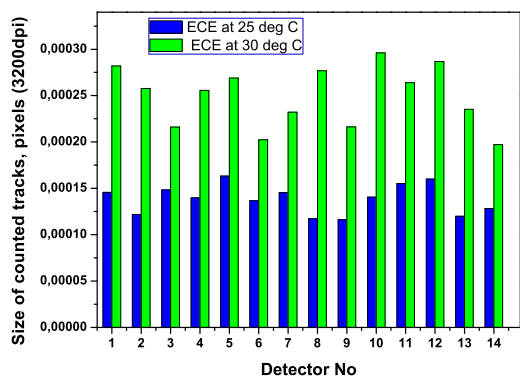
Фигура III.8: Корелации между плътности на трековете в дискове, оценени чрез броене с оптичен микроскоп и чрез автоматично броене с програмата DGTrack след сканиране с компютърен скенер. Дисковете, включени в едната фигура са различни от тези в другата и са сканирани с различен скенер. Линиите са получени по метода на най-малките квадрати, а неопределеностите на точките са на ниво едно стандартно отклонение.

където  $l = 25$  е броят на преброените полета,  $s$  е площта на всяко от тях, а  $N_{\text{avg}}$  е средният брой трекове върху поле.

Корелацията между плътностите на трековете, определени чрез „ръчно“ и автоматично броене е показана на Фиг. III.8а. Вижда се, че тя е много добра (с коефициент на корелация  $R=0.998$ ). Ъгловият коефициент на правата, който има смисъл на относителна ефективност на автоматичното броене спрямо „ръчното“, е  $a = 0.818 \pm 0.006$ . По-късно при ново изследване, друга група дискове са преброени по двата метода, но са сканирани по същия начин с друг скенер (Epson Perfection V500 Photo). Отново е наблюдавана отлична линейна зависимост с близък ъглов коефициент -  $a = 0.795 \pm 0.003$  (Фиг. III.8б). Сканирането на едни и същи дискове с двата скенера също води до еднакви резултати при броенето с DGTrack.

Трябва да се има предвид, обаче, че при други условия на облъчване и ецване не може да се очаква относителната ефективност на автоматичното броене и диапазона от плътности на трековете, за които е приложимо, да се запазят. Например, ако облъчването се реализира не в радонова атмосфера, а с външен алфа-източник, то разпределението на проявените трекове по размери може да е различно (поради различен ъгъл на падане на алфа-частиците върху повърността). Друг пример е ецване на дисковете при различна температура - при температура  $30^{\circ}\text{C}$  трековете са по-големи (Фиг. III.9). Затова относителната ефективност на броенето с програмата трябва да е свързана с конкретните условия.

При дадените условия на облъчване и измерване, автоматичното броене пропус-



Фигура III.9: Сравнение между средния размер на треквете, получени при ецване на парчета от едни и същи дискове при температура 25°C и 30°C.

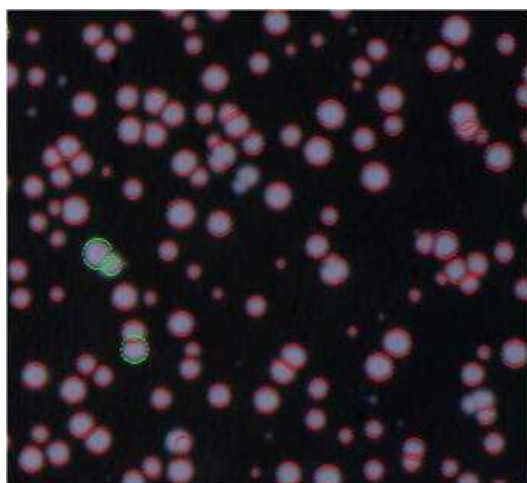
ка около 20 % от треквете, видими с микроскопа. Действително, на сканираните изображения са видими пропуснати трекове с малък размер и контраст. Опитите ни да изберем параметри, при които алгоритъмът да преброи тези трекове (главно чрез намаляване на  $C_{\text{thold}}$ ), доведоха до множество „артефакти“ и фонови пиксели, преброени като трекове. Считаме, че относителната ефективност на броенето с „DGTrack“ спрямо „ръчното“ броене, е достатъчно висока, за да бъде компенсирана от предимствата на този подход. Важен извод от направеното сравнение е, че ефективността на броенето с „DGTrack“ е еднаква за широк диапазон от плътности на треквете - до  $2000 \text{ tr.cm}^{-2}$ . Тя се запазва за детектори от различни марки и с различна възраст, облъчени в различна среда и обработвани в независими сесии. Още по-важно е, че качеството на броене е еднакво за нови и за използвани дискове. Това е предпоставка за съгласуваност между резултатите, получени при калибриране на нови дискове и при реални измервания с използвани дискове.

### III.2.2.2 Сравнение между диапазона от плътности на треквете и скоростите на броене

	Автоматично броене	Ръчно броене - 25 полета		
		x4	x10	x40
Сумарна площ, $\text{cm}^2$	5	5.1	0.71	0.047
Максимална плътност, $\text{cm}^{-2}$	2000	400	2800	6000*
Плътност за $\delta_n < 10 \%$ , $\text{cm}^{-2}$	>20	>20	>140	>2100
Време за 30 детектора, min	75	150	150	150
Скорост, $\text{cm}^2 \cdot \text{min}^{-1}$	2	1	0.14	0.01

Таблица III.1: Сравнение между автоматичното броене с DGTrack и „ръчното“ с оптичен микроскоп при различни увеличения.

Скоростта на „ръчното“ броене чрез оптичен микроскоп и диапазонът от плътности на треквете, за които този подход е приложим, зависят от увеличението, при което се работи. При нашите изследвания сме използвали три различни увеличения на обектива,



Фигура III.10: Пример за броне при висока плътност на трековете. Макар, че се наблюдават пропуснати трекове, може да се оцени долна граница на плътността на трековете. В случая тя е  $1950 \text{ tr.cm}^{-2}$ .

означени условно с  $\times 4$ ,  $\times 10$  и  $\times 40$ . Изборът на увеличение зависи от броя трекове, видими върху полето. Когато той е много висок и не позволява надеждно броене, се избира по-голямо увеличение. В Таблица III.1 е дадена максималната плътност на трековете, при която може да се използва дадено увеличение. За увеличения  $\times 4$  и  $\times 10$ , тя е пресметната като плътността, при която върху едно поле са видими 80 трека (стойност, при която опитен оператор все още се „справя“ с броенето). Препоръчително е тази граница да не се приема като абсолютна (още повече, че може да варира в зависимост от оператора). При плътности на трековете близки до нея, е добре детекторът да се преброи и при по-голямото увеличение, след което да се сравнят получените оценки. Ако оценените плътности на трековете съвпадат, трябва да се използва оценката, направена при по-малкото увеличение, тъй като тя е с по-ниска неопределеност. В случай че не съвпадат, трябва да се използва оценката при по-голямото увеличение. За увеличение  $\times 40$  стойността  $6000 \text{ tr.cm}^{-2}$  е пресметната за 10-11 трека на поле. Причината е, че при по-голям брой е видимо припокриване на трековете в голяма част от площта им (това показва и оценката на площите - при това увеличение площта на полето е равна на площта на 24 трека с диаметър  $100 \mu\text{m}$ ). Тази граница също е условна. Както е показано в предходната част, програмата „DGTrack“ брои надеждно до  $2000 \text{ tr.cm}^{-2}$ . Дори при по-големи плътности тя продължава успешно да разделя трековете (Фиг.III.10), но ефективността и спрямо оптичното броене спада. Резултатите от автоматично броене на детектори, като този на Фиг.III.10, също са полезни, тъй като позволяват да се определи долна граница на плътността на трековете (и съответно на оценяваната активност). Това пък, от своя страна, помага при избора на дълбочина, на която да се ецва друго парче от същия диск, за да се получи количествен резултат (виж част III.4.3).

Като критерий за минимална плътност на трековете, може да се въведе максимална стойност на относителната неопределеност, с която се оценява плътността. В



Фигура III.11: Пример за броене с DGTrack при ниски плътности. На изображението са преброени 14 трека, а оценената плътност на треките е  $9.7 \text{ tr.cm}^{-2}$ .

Таблица III.1 са дадени стойностите на плътността на треките, над които относителната неопределеност не надвишава 10 %. При броене с микроскоп, неопределеността  $\delta n_{\text{max}}$  зависи от броя полета, преброени при даденото увеличение (уравнение III.12). Да се преброят по повече от 25 полета от всеки детектор е нецелесъобразно. От друга страна, неопределеността при автоматичното броене (уравнение III.10) би могла да се понижи няколко пъти чрез сканиране на по-големи площи.

Трябва да се отбележи, че „DGTrack“ работи много добре и при плътности на треките по-ниски от  $20 \text{ tr.cm}^{-2}$ . Това е илюстрирано на Фиг.III.11. Както се вижда на нея, артефактите са разпознати, а треките са маркирани коректно. Възможността за надеждно броене на ниски плътности е полезна при измерванията на ниски активности, като например проспективните измервания на радон във вода (виж част IV.2).

Сравнението между скоростите на броене е направено по два критерия. Първият е времето, за което се преброяват 30 детектора (колкото е дневният капацитет на нашата лаборатория). Макар, че скоростта на оптичното броене зависи от броя трекове, видими през едно поле, може да се приеме, че един детектор се преброява средно за 5 минути и съответно 30 детектора за 150 минути. Сканирането и броенето на 30 детектора с „DGTrack“ отнема не повече от 75 минути и по-голямата част от това време се изразходва за сканиране (включително за позициониране на детекторите върху скенера). Реалното време, за което „DGTrack“ анализира изображение с площ  $4 \text{ cm}^2$  при модерен компютър (Intel Core2 Quad CPU @ 2.5 GHz, 2 GB RAM) е по-малко от 10 секунди. Вторият избран критерий е скоростта на броене, дефинирана като отношение на анализираната площ към времето за преброяване на треките върху нея. От Таблица III.1 се вижда, че макар, при най-малкото увеличение скоростите на ръчното и автоматичното броене да се различават само два пъти, тази разлика значително нараства при по-големите увеличения. Скоростта



на автоматичното броене би могла още да се подобри, ако се реализира ефективен начин за позициониране на повече детектори върху скенера и за автоматичен избор на сканираните полета. Това е постигнато в лабораторията на НРА - скоростта на използваната там система (скенер Nikon LS 2000 с разделителна способност 2700 dpi и софтуер) е  $10 \text{ cm}^2 \cdot \text{min}^{-1}$  (по данни от литература [99]).

Направеното сравнение между автоматично броене с „DGTrack“ и „ръчно“ броене с оптичен микроскоп показва, че:

- Автоматичното броене лесно покрива почти цялата обработена повърхност на диска и позволява да се постигнат по-ниски относителни неопределености на оценената плътност на трековете.
- Автоматичното броене позволява изображенията на преброените детектори да бъдат запазени, за архив или за контрол на качеството на броене.
- Автоматичното броене е по-бързо и по-малко уморително за оператора.

Гореизброените предимства на автоматичното броене го правят много подходящо за широкомащабни измервания. Въпреки това, оптичното броене е полезно в случаи на високи плътности на трековете и трябва да се прилага за контрол на качеството на автоматичното броене.

### III.3 Калибриране.

По същество калибрирането представлява установяване на връзката между сигнала от детектора и измерваната физична величина, т.е. определяне на калибровъчния коефициент  $CF$  (дефиниран с уравнение II.4). За целта трябва да се проведе облъчване при точно известни обемни активности на радона и при строго фиксирани условия. Оценката за обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  при облъчването трябва да е проследима до международен стандарт чрез калибрирано средство за измерване или чрез използване на сертифициран източник на радон. Как е реализирано това при проведените от нас калибрания е показано по-долу.

Оцененият калибровъчен коефициент може да бъде прилаган директно само за измервания при същите условия, при които е проведено калибрирането. Прилагането му за други условия изисква въвеждане на коригиращ коефициент или аргументирано разширяване на неопределеността на обемната активност. Условията, при които могат да се използват оценените калибровъчни коефициенти са посочени по-нататък в тази част.

Подходите за оценка на коригиращи множители и за разширяване на неопределеността на обменната активност при различаващи се или вариращи условия са разгледани в част III.4.

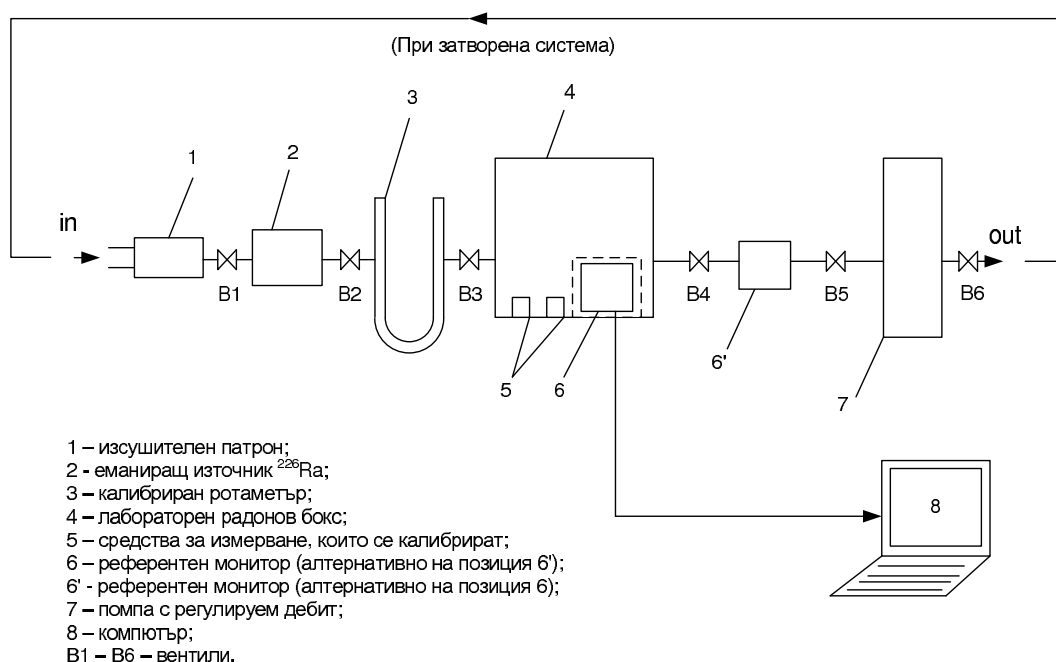
Един от най-важните въпроси при ретроспективните измервания е доколко резултатите, получени при използване на отделни предмети-свидетели, които не са специално разработени за целта детектори на радон, се различават помежду си. В случай, че калибровъчният коефициент на различните дискове съвпада, той може да се прилага при всяко измерване (като периодично се проверява). В случай, че между калибровъчните коефициенти на дисковете се наблюдават значими разлики е необходимо всеки диск да бъде калибриран индивидуално. Едно от съществените предимства на CD-метода е, че всеки диск може да бъде индивидуално калибриран след измерването (т.нар. *a posteriori* калибриране). Това се реализира чрез допълнително облъчване на част от диска, която не е използвана за проведеното измерване. За да изберем подход за калибриране (т.е. прилагане на общ предварително определен калибровъчен коефициент или провеждане на *a posteriori* калибриране на всеки диск), изследвахме калибровъчните коефициенти на различни нови и използвани дискове. Резултатите от проведеното изследване са представени в тази част.

Калибрирането се провежда по идентичен начин за нови и за използвани дискове. Процедурата за калибриране на дискове, разработена в лабораторията по „Дозиметрия и лъчезащита“ [106], е описана по-долу.

### III.3.1 Процедура за облъчване на CD/DVD

Облъчването се провежда при контролирана температура (както е коментирано в част II.3 температурата е външния фактор, който може съществено да повлияе на калибровъчния коефициент). Избраната температура трябва да е близка до средногодишната стайна температура (около  $20 \div 22^\circ \text{C}$ ), за да може оценените калибровъчни коефициенти да се прилагат за ретроспективни измервания в сгради.

Елементите на установката за калибриране са показани на Фиг.III.12. Радонният генератор представлява сертифициран източник  $^{226}\text{Ra}$  (Фиг.III.13а) с активност  $A_{\text{cert}} = 104,5 \pm 1,5 \text{ \% kBq}$  (към 01.05.2006г.), произведен от Чешкия метрологичен институт. Източникът има свободен обем от 260 ml, в който се отделя полученият от радия  $^{222}\text{Rn}$  и еманационна способност  $p = 0,998$ , която показва каква част от активността на  $^{222}\text{Rn}$  се отделя в свободния обем. Дисковете се облъчват в херметичен съд (Фиг.III.13б) с точно известен (референтен) обем от 50 L. Обемът на съда е достатъчно голям, така че по време на облъчването активността в него не намалява за сметка на абсорбирания в диско-



Фигура III.12: Схема на използваната установка за калибриране. При отворена система въздухът преминава еднократно през обема, в който се облъчват дисковете, а при затворена система циркулира многократно през него.

вете радон (ако едновременно се облъчват не повече от 50 цели диска или поликарбонати с равна площ).

Обемните активности на  $^{222}\text{Rn}$  в системата се измерват с референтен монитор AlphaGuard<sup>®</sup> (Фиг. III.13в), който е калибриран и проследим до стандартите, поддържани в NIST<sup>5</sup>, NPL<sup>6</sup> и PTB<sup>7</sup> [107]. Мониторът AlphaGuard<sup>®</sup> е базиран на йонизационна камера и може да работи в дифузионен или в проточен режим. И в двата режима ДПР от въздуха се филтрират и не постъпват в обема на камерата. Камерата регистрира сигнал, дължащ се на постъпилия радон и получените от него ДПР. През определен интервал, мониторът показва средната за интервала обемна активност на радона и нейната неопределеност, както и текущите стойности на налягането, влажността и температурата. Неопределеността на измерването зависи, както от обемната активност в дадения интервал, така и от обемните активности в предходните интервали (тъй като натрупаните през предходните интервали ДПР, повишават фона на камерата). Показанията могат да се записват в компютър, чрез специално устройство. Мониторът може да бъде поставен вътре съда, като в този случай се избира дифузионен режим на работа. Другата възможност е монитора да се свърже след херметичния съд и да му се зададе да работи в проточен режим. Облъчването може да се реализира в отворена или в затворена система (снимка на свързаната

<sup>5</sup>National Institute of Standards and Technology, USA

<sup>6</sup>National Physical Laboratory, UK

<sup>7</sup>Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Germany



(а)



(б)



(в)



(г)

Фигура III.13: Установка за калибриране на дискове (и други детектори за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във въздух), използвана в лаборатория „Дозиметрия и лъчезащита“: (а) Радонов генератор - сертифициран източник  $^{226}\text{Ra}$ ; (б) Херметичен съд с референтен обем, с входен и изходен вентил и с изход за комуникация с радоновия монитор AlphaGuard<sup>®</sup>, който може да се постави вътре; (в) Радонов монитор AlphaGuard<sup>®</sup>, поставен извън референтния обем и свързан след него; (г) Цялата установка.

система е показана на Фиг. III.13г). Особеностите и предимствата на всяка система са дискутирани по-долу.

### III.3.1.1 Облъчване в отворена система

Въздухът преминава еднократно през отворената система, като дебитът му се поддържа постоянен с помощта на помпа с регулируем дебит. В началния момент активността на  $^{222}\text{Rn}$  в генератора трябва да е нула (т.е. източникът да е продухан). Тогава обемната активност на радона  $A_v$  в референтния обем се дава с:

$$A_v = \lambda_{222} \frac{pA_{\text{cert}}}{Q} \left( 1 - \exp\left(-\frac{Qt}{V}\right) \right), \quad (\text{III.13})$$

където  $\lambda_{222}$  е константата на разпадане на  $^{222}\text{Rn}$ ,  $V$  е референтния обем,  $Q$  е дебита на въздуха, а  $t$  е времето, изминало от началото на облъчване. След време, за което през системата е преминал достатъчно голям обем въздух, експонентата в уравнение (III.13) може да се пренебрегне (при  $t = \frac{4.6V}{Q}$  експонентата е равна на  $1.10^{-2}$ ). Тогава може да се приеме, че в системата се е установила равновесна активност:

$$A_v = \lambda_{222} \frac{pA_{\text{cert}}}{Q}. \quad (\text{III.14})$$

Уравнение (III.14) разкрива основното предимство на разглежданата отворена система, а именно, че с промяна на дебита на въздуха може да се регулира обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$ . Въпреки това в отворена система не могат да бъдат постигнати много високи обемни активности, тъй като намаляването на дебита води до увеличаване на времето за постигане на равновесие. Например при дебит  $Q = 1 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  и обем на съда  $V = 50 \text{ L}$  активност, равна на 99 % от равновесната, се достига за 230 min. При тези условия равновесната обемна активност е  $A_v = 0.13 \cdot A_{\text{cert}}$ , в единици  $[\text{kBq} \cdot \text{m}^{-3}]$ . За постигане на високи интегрирани обемни активности е необходимо увеличаване на времето на облъчване. С използвания от нас източник, за постигането на интегрирана обемна активност, равна на тази, при която е облъчен диск, съхраняван 10 у при  $40 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ , е необходимо облъчване с продължителност 260 h.

Познаването на дебита, който в случая измерваме с ротаметър, дава възможност да се оцени обемната активност в системата по метод, независим от референтния монитор. Двете оценки на обемната активност са проследими до различни радонови стандарти.

При проведеното от нас облъчване за определяне на интегрираната по време обемна активност  $I_{\text{ref}}$ , при която е проведено облъчването, използвахме стойности на

обемната активност, определени от монитора AlphaGuard<sup>®</sup>. Измерванията бяха проведени през равни интервали с продължителност  $\Delta t = 10 \text{ min}$ . Тогава:

$$I_{\text{ref}} = \Delta t \sum_i A_V^i, \quad (\text{III.15})$$

където  $A_V^i$  е стойността, измерена през  $i$ -тия интервал. Тъй като облъчването бе проведено при постоянен дебит и съответно постоянна обемна активност, относителната неопределеност на  $I_{\text{ref}}$  бе оценена като:

$$\delta_{I_{\text{ref}}} = \max(\delta_{A_V^i}). \quad (\text{III.16})$$

Външната неопределеност на стойностите  $A_V^i$ , оценена като стандартно отклонение на отделното измерване, бе пренебрежима.

### III.3.1.2 Облъчване в затворена система

При затворената система въздухът циркулира през източника, съда с детекторите, референтния монитор AlphaGuard<sup>®</sup> (който е извън съда) и херметична помпа, докато активността в системата се хомогенизира. След това съдът се затваря херметично и активността в него намалява експоненциално, поради разпадането на радона. Референтният монитор би могъл да се постави и вътре в съда, но честото използване на монитора за измерване на високи обемни активности води до трайно повишаване на фона му, поради натрупване на  $^{210}\text{Pb}$  в йонизационната камера. Затова измерванията се провеждат в началото на облъчването, за да се определи кога е достигната хомогенна активност и в края на облъчването, за да се провери херметичността на системата по време на облъчването. Тази система също позволява алтернативен подход за оценка на обемната активност на радона, независим от измерването с референтния монитор. Ако генераторът е бил затворен достатъчно дълго време, за да се установи в него радиоактивно равновесие между  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{222}\text{Rn}$  (при 26 дни разликата в активностите е по-малко от 1 %), то началната обемна активност в системата  $A_V(0)$  се дава с:

$$A_V(0) = \frac{pA_{\text{cert}}}{V}. \quad (\text{III.17})$$

Този подход изисква точно познаване на обема на системата и разчита на добра херметичност на източника и на системата. В нашия случай, той е използван само за сравнение с показанията на монитора в началото на облъчването, за да се определи кога е достигната хомогенна активност. За пресмятане на интегрираната по времето обемна

активност  $I_{\text{ref}}$  е използвана измерената от монитора стойност на  $A_V(0)$ . Относителната неопределеност на  $I_{\text{ref}}$  е равна на относителната неопределеност на  $A_V(0)$ :

$$I_{\text{ref}} = \int_0^{T_{\text{exp}}} A_V(t) dt = \frac{A_V(0)}{\lambda_{222}} (1 - \exp(\lambda_{222} T_{\text{exp}})), \quad (\text{III.18})$$

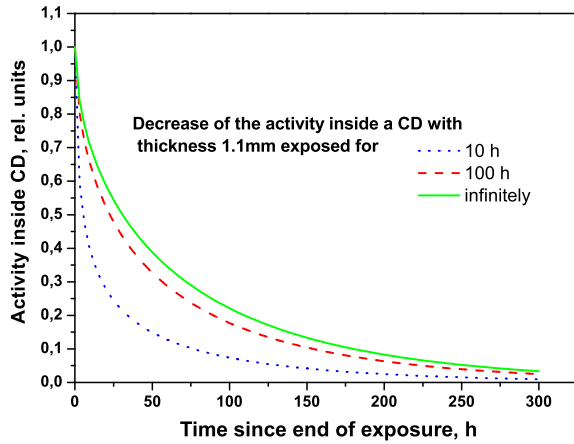
$$\delta_{I_{\text{ref}}} = \delta_{A_V(0)}. \quad (\text{III.19})$$

Облъчването в затворена система позволява да се постигнат по-високи обемни активности, отколкото при отворената система и облъчването да е по-кратко. При същия обем на съда от  $V = 50$  L, началната обемна активност е  $A_V(0) = 20 \cdot A_{\text{cert}}$ , в единици  $[\text{kBq} \cdot \text{m}^{-3}]$ . Максимално постижимата интегрирана обемна активност е  $I_{\text{ref}} = 2640 \cdot A_{\text{cert}}$  в единици  $[\text{kBq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}]$ . С използвания от нас източник, за постигането на интегрирана обемна активност, равна на тази, при която е облъчен диск, съхраняван 10 у при  $40 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ , е достатъчно облъчване с продължителност 1.8 h.

### III.3.1.3 Дегазиране на дисковете

След облъчването, дисковете трябва да се оставят поне две седмици в атмосфера, несъдържаща радон. Целта е абсорбираният радон да се разпадне или да дегазира от обема на диска. Важно е тази стъпка да се спазва при калибровъчните облъчвания, които са кратки и при които радонът, намиращ се в диска в края на облъчването, не може да се пренебрегне спрямо абсорбирания по време на цялото облъчване радон. При реални измервания, при които дисковете са облъчвани в продължение на години, тази стъпка може да се пропусне без да повлияе на резултата.

Процесът на десорбция при дегазирането компенсира процеса на абсорбция в началото на облъчването. Именно поради това, калибровъчният коефициент на дисковете не зависи от продължителността на облъчването. Това е доказано в Приложение А.3 на базата на теоретичен модел на процесите на сорбция и десорбция на  $^{222}\text{Rn}$  в поликарбонати [74]. Теоретичният модел позволява и да се изведе аналитичен израз за активността в диск след края на облъчването като функция на времето. Тази зависимост е показана на Фиг. III.14 за компакт дискове, облъчени различно време. За по-тънките дигитални дискове, спадането на активността е дори по-бързо. След две седмици в дискове, облъчени 10 h и 100 h, остава активност съответно 1 % и 2.5 % от активността в момента на прекратяване на облъчването. Тази активност може да се пренебрегне спрямо интегрираната по времето на облъчване активност.



Фигура III.14: Намалвяване на активността на  $^{222}\text{Rn}$  в компакт-диск с времето, изминало от края на облъчването на диска. Зависимостта е получена аналитично, на база на модел, представен в [74]. Вижда се, че след по-малко от две седмици в дисковете остава пренебрежима активност, дори при безкрайно дълго облъчване.

### III.3.2 Оценка на калибровъчния коефициент и комбинираната му неопределеност

От дефиницията на калибровъчния коефициент (уравнение II.4) следва, че той може да се определи като:

$$CF(d_0) = \frac{n_{\text{net}}(d_0)}{I_V} = \frac{n_{\text{cal}}(d_0) - n_b(d_0)}{I_{\text{ref}}}, \quad (\text{III.20})$$

където чистата плътност на трековете  $n_{\text{net}}$  се определя като разлика между плътността на всички проявени трекове ( $n_{\text{cal}}$ ) и плътността на трековете, формирани преди калибровъчното облъчване на дадената дълбочина ( $n_b$ ). Стойността на  $n_b$  се определя за парче от същия диск, което не е било облъчено при калибрирането. При стандартно калибриране на нови дискове,  $n_b$  има смисъл на фонова плътност на трековете и в следващите части е означена с  $n_{\text{bg}}$ . При *a posteriori* калибриране на дискове, използвани за ретроспективни измервания в жилища,  $n_b$  е плътността на трековете, на базата на която се определя обемната активност в жилището и в следващите части е означена с  $n_{\text{base}}$ . В случай, че на дълбочина  $80 \mu\text{m}$ ,  $n_{\text{base}}$  има стойност близка до прага на насищане от  $2000 \text{ cm}^{-2}$ , тогава и парче от оригиналния диск, и допълнително облъченото парче, използвано за калибриране, трябва да се ецват на по-голяма дълбочина, където трековете са по-малко.

Тъй като при преецването отнетата дебелина  $d_l$  често не е точно равна на планираната дебелина  $d_0$  е необходимо оценената при броенето плътност на трековете да се коригира, за да се оцени плътността на трековете на дълбочина  $d_0$ . Корекцията  $C_d$  може да се оцени като се отчете експоненциалната зависимост на плътността на трековете от дълбочината (уравнение II.5):



$$C_{a,1,0} = \exp(-\beta(T)(d_l - d_0)) = \exp\left(-\frac{(d_l - d_0)}{L_D(T)}\right). \quad (\text{III.21})$$

В Приложение А.1 е даден полином, описващ зависимостта на дължината на дифузия ( $L_D$ ) от температурата в интервала  $5 \div 38^\circ\text{C}$ . Дадени са и експериментално оценени стойности на  $L_D$ , заедно с техните неопределености. Ако приемем за средна стайна температура  $22^\circ\text{C}$ , то  $L_D = 55.7 \mu\text{m}$ . При коригирането трябва да се отчете, че температурата варира. Нека при калибрирането температурата варира в интервала  $21 \div 23^\circ\text{C}$  - тогава за нови дискове, облъчени само в лабораторни условия абсолютната неопределеност на дължината на дифузия е  $\sigma_{L_D} = 1.8 \mu\text{m}$ . Ако при облъчване в жилища температурата варира в интервала  $18 \div 26^\circ\text{C}$ , то за използвани дискове  $\sigma_{L_D} = 7.8 \mu\text{m}$ . Стойности на корекцията за дълбочина при няколко стойности на  $d_0$  и при  $L_D = 55.7 \mu\text{m}$  са дадени в Таблица III.2. Както се вижда корекцията е съществена и дори при разлика в дълбочините от  $2 \mu\text{m}$  не може да се пренебрегне спрямо компонентите на неопределеността (разгледани по-долу).

$d_l - d_0, \mu\text{m}$	-10	-5	-3	-2	-1	1	2	3	5	10
$C_{a,1,0}$	1.197	1.094	1.055	1.037	1.018	0.982	0.965	0.947	0.914	0.835

Таблица III.2: Коефициент, използван за коригиране на плътността на трековете, в случай, че дълбочината на която са проявени  $d_l$  е различна от планираната  $d_0$ . Прилагането на корекцията привежда  $n$  към  $d_0$ .

С отчитане на корекцията за дълбочина уравнение III.20 приема вида:

$$CF(d_0) = \frac{n_{\text{net}}}{I_{\text{ref}}} = \frac{n_{\text{cal}}(d_1)C_{a,1,0} - n_b(d_2)C_{a,2,0}}{I_{\text{ref}}}. \quad (\text{III.22})$$

Оценката на комбинираната относителна неопределеност на калибровъчния коефициент, съгласно формулата за разпространение на неопределеностите  $\sigma_{f(x_1, x_2, \dots, x_m)} = \sqrt{\frac{\partial^2 f}{\partial x_i^2} \sigma_{x_i}^2}$ , се дава с:

$$\delta_{CF} = \sqrt{\delta_{I_{\text{ref}}}^2 + \delta_{n_{\text{net}}}^2}, \quad (\text{III.23})$$

$$= \sqrt{\delta_{I_{\text{ref}}}^2 + \frac{(\delta_{n_{\text{cal}}}^2 + \delta_{C_{a,1,0}}}^2)n_{\text{cal}}^2 C_{a,1,0}^2 + (\delta_{n_b}^2 + \delta_{C_{a,2,0}}}^2)n_b^2 C_{a,2,0}^2}{n_{\text{net}}^2}}. \quad (\text{III.24})$$

Отделните типове неопределеност, участващи в горната оценка са:

1. Неопределеност на  $I_{\text{ref}}$  -  $\delta_{I_{\text{ref}}}$

Стойността и зависи от стойността на обемната активност и от конкретния референ-тен монитор, който се използва за измерване. При проведените от нас калибrierания бяха използвани обемни активности в диапазона от 11 до 1900 kBq.m<sup>-3</sup>, определе-ни чрез измервания с AlphaGuard<sup>®</sup>. При всеки от случаите оценката за  $\delta_{I_{ref}}$  (дадена от уравнение (III.16) за отворена и от уравнение (III.19) за затворена система ) не надвишаваше 5%.

2. Статистическа неопределеност на плътностите на трековете:

В случай на автоматично броене неопределеностите на плътността на трековете се определят с уравнение III.10 и съответно  $\delta_{n_{cal}}^2 = \sqrt{\frac{1}{n_{cal}S_{cal}}}$  и  $\delta_{n_b}^2 = \sqrt{\frac{1}{n_bS_b}}$ . Обикновено площта на сканираната повърхност е около 5 cm<sup>2</sup>.

3. Неопределеност на корекцията за дълбочина -  $\delta_{C_d} = \frac{\sigma_{C_d}}{C_d}$

Неопределеността на корекцията за дълбочина трябва да се отчита, дори когато от-нетата дебелина  $d_l$  е равна на  $d_0$ , за да се отчете неопределеността на  $d_l$ , която е определена чрез измерване. Абсолютната неопределеност на корекцията за дълбо-чина може да се представи като:

$$\sigma_{C_{d,1,0}} = \sqrt{\frac{\sigma_{d_l-d_0}^2}{L_D^2} + \frac{(d_l - d_0)^2 \sigma_{L_D}^2}{L_D^2}} = \sqrt{\frac{\sigma_{d_l}^2 + \sigma_{d_0}^2}{L_D^2} + \frac{(d_l - d_0)^2}{L_D^2} \delta_{L_D}^2}. \quad (III.25)$$

Тъй като  $d_0$  е предварително зададена, а не определена чрез измерване, то  $\sigma_{d_0} = 0$ . Обикновено  $\sigma_{d_l} = 1.5 \div 3 \mu\text{m}$ . В Таблица III.3 са пресметнатите стойности на  $\sigma_{C_d}$  за няколко различни случая. Както се вижда от сравнението на първите две колонки в таблицата, при корекция на плътността на трековете след калибrierане на нови дискове (при които  $\sigma_{L_D}$  е малко) вторият член под корена може да се пренебрегне. За да не се работи при висока неопределеност, корекции не се прилагат при  $d_l - d_0 > 10 \mu\text{m}$  - при такива разлики се обработват нови парчета от диска. При типични стойности -  $\sigma_{d_l} = 2 \mu\text{m}$  и  $|d_l - d_0| \leq 5 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_{C_d} \leq 0.044$ .

$\sigma_{d_l}, \mu\text{m}$	Калибrierане нови дискове		Използвани дискове	
	$ d_l - d_0  = 10 \mu\text{m}$	$ d_l - d_0  = 5 \mu\text{m}$	$ d_l - d_0  = 10 \mu\text{m}$	$ d_l - d_0  = 5 \mu\text{m}$
1	0.0188	0.0182	0.0309	0.0219
2	0.0364	0.0360	0.0438	0.0380
3	0.0542	0.0539	0.0594	0.0553

Таблица III.3: Абсолютна неопределеност на корекцията за дълбочина  $\sigma_{C_d}$  при различни стойности на разликата в дълбочините, за която се коригира и на неопределеността, с която са оценени дълбочините.

За да се оценят граници на неопределеността на  $CF$  е удобно в уравнение III.24 да се заместят изразите за статистическата неопределеност на плътността на трековете. Тогава:

$$\delta_{CF} = \sqrt{\delta_{I_{\text{ref}}}^2 + \frac{\frac{n_{\text{cal}}}{S_{\text{cal}}} C_{d,1,0}^2 + \sigma_{C_{d,1,0}}^2 n_{\text{cal}}^2 + \frac{n_b}{S_b} C_{d,2,0}^2 + \sigma_{C_{d,2,0}}^2 n_b^2}{n_{\text{net}}^2}}. \quad (\text{III.26})$$

По-нататък неопределеностите при калибриране на нови и на използвани дискове са разгледани поотделно.

### III.3.2.1 Неопределеност на калибровъчния коефициент при калибриране на нови дискове

При новите дискове  $n_b = n_{\text{bg}} \ll n_{\text{cal}}$ . Тогава, ако се пренебрегнат членовете в уравнение III.26, съдържащи  $n_b$  и се използва, че  $n_{\text{cal}} \approx \frac{n_{\text{net}}}{C_{d,1,0}}$ , изразът за неопределеността на калибровъчния коефициент се опростява до:

$$\delta_{CF} = \sqrt{\delta_{I_{\text{ref}}}^2 + \frac{C_{d,1,0}}{n_{\text{net}} S_{\text{cal}}} + \delta_{C_{d,1,0}}^2}. \quad (\text{III.27})$$

Тъй като при калибриране обикновено се цели  $n_{\text{net}}$  да е около  $200 \div 400 \text{ tr.cm}^{-2}$ , вторият член в горния израз не е доминиращ. Разлики в неопределеността ще се дължат на разлики в последния член. Максимална неопределеност при „разумни“ условия се достига при  $d_1 - d_0 = 10 \mu\text{m}$  ( $\sigma_{C_d} = 0.054$  и  $C_d = 0.835$ ),  $n_{\text{net}} = 200 \text{ tr.cm}^{-2}$  и  $S = 4 \text{ cm}^2$  и е равна на  $\delta_{CF} = 8.8 \%$ . Типичните стойности на горните параметри, обаче са  $|d_1 - d_0| \leq 5 \mu\text{m}$  и  $\sigma_{d_1} = 2 \mu\text{m}$  ( $\sigma_{C_d} \leq 0.036$  и  $C_d \geq 0.914$ ),  $n_{\text{net}} = 400 \text{ tr.cm}^{-2}$  и  $S = 5 \text{ cm}^2$ . **Неопределеността на калибровъчния коефициент за нови дискове типично е  $\leq 6.7 \%$ .**

### III.3.2.2 Неопределеност на калибровъчния коефициент при калибриране на използвани дискове

Като се използва, че  $n_{\text{cal}} = \frac{n_{\text{net}} + n_{\text{base}} C_{d,2,0}}{C_{d,1,0}}$ , уравнение III.26 може да се представи като:

$$\delta_{CF} = \sqrt{\delta_{I_{\text{ref}}}^2 + \frac{\frac{n_{\text{net}} C_{d,1,0}}{S_{\text{cal}}} + \delta_{C_{d,1,0}}^2 (n_{\text{net}} + n_{\text{base}} C_{d,2,0})^2 + \frac{n_{\text{base}} C_{d,2,0}}{S_{\text{base}}} + \sigma_{C_{d,2,0}}^2 n_{\text{base}}^2}{n_{\text{net}}^2}}. \quad (\text{III.28})$$

Вижда се че неопределеността нараства при намаляване на  $n_{\text{net}}$  и площите  $S$  и при увеличаване на всички останали параметри в израза. Неопределеността нараства значително при нарастване на  $n_{\text{base}}$ , затова не се препоръчва да се работи с  $n_{\text{base}} > 400 \text{ tr.cm}^{-2}$

(съответства на облъчване при около  $200 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  за 10y). При по-голяма стойност дисковете могат да се ецват на по-голяма дълбочина. При това условие максималната неопределеност се получава при  $n_{\text{base}} = 400 \text{ tr}\cdot\text{cm}^{-2}$ . В такива случаи е добре да се работи при сравнимо  $n_{\text{net}} = 400 \text{ tr}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Оценка за максималната неопределеност може да се направи при  $d_1 - d_0 = 10 \mu\text{m}$  ( $\sigma_{C_{d_1}} = 0.054$  и  $C_{d_1} = 0.835$ ),  $d_2 - d_0 = -10 \mu\text{m}$  ( $\sigma_{C_{d_2}} = 0.054$  и  $C_{d_2} = 1.197$ ) и  $S_{\text{cal}} = S_{\text{net}} = 4 \text{ cm}^2$  и е равна на  $\delta_{CF} = 17.8 \%$ . Типичните стойности се различават от горните и са:  $n_{\text{net}} = 400 \text{ tr}\cdot\text{cm}^{-2}$ ,  $n_{\text{base}} = 100 \text{ tr}\cdot\text{cm}^{-2}$ ,  $S_{\text{cal}} = S_{\text{net}} = 5 \text{ cm}^2$  и  $\sigma_{C_{d_1}} \leq 0.044$  и  $C_{d_1} \geq 0.914$  и  $\sigma_{C_{d_2}} \leq 0.044$  и  $C_{d_2} \leq 1.094$  (при  $|d_l - d_0| \leq 5 \mu\text{m}$  и  $\sigma_{d_l} = 2 \mu\text{m}$ ). **Неопределеността на калибровъчния коефициент за използвани дискове типично е  $\leq 8.4 \%$ .**

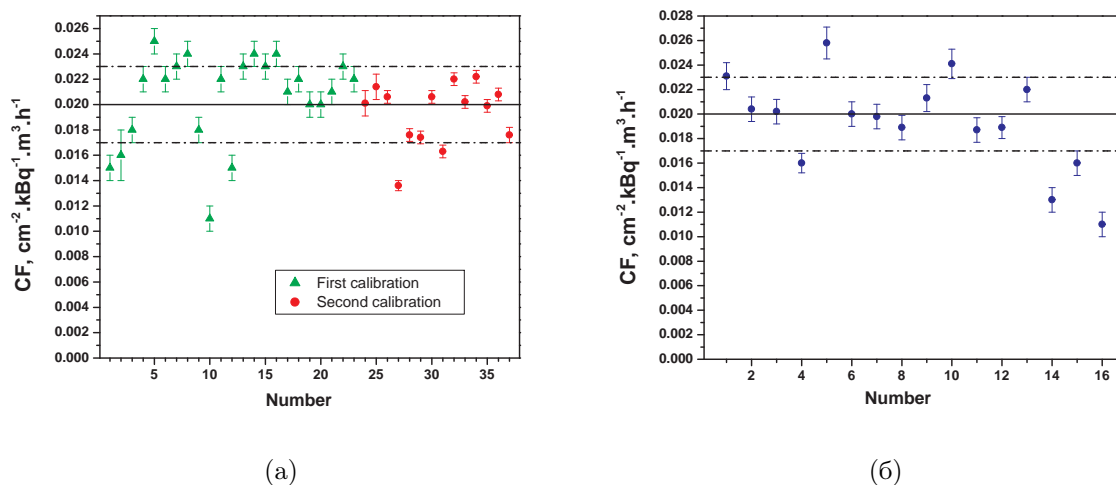
### III.3.3 Резултати от проведени калибрирания

№	Дискове	Режим на облъчване	Продължителност, h	$I_{\text{ref}}$ , $\text{kBq}\cdot\text{h}\cdot\text{m}^{-3}$	$CF$ , $\text{cm}^{-2}\cdot\text{kBq}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^3$
1	нови	отворена с-ма, $A_V = \text{const}$	432	$9850 \pm 4.4 \%$	$0.021 \pm 0.003$
2а	нови	затворена с-ма $A_V = A_V(0)e^{-\lambda_{222}t}$	11	$19600 \pm 4.0 \%$	$0.019 \pm 0.003$
2б	използвани	затворена с-ма $A_V = A_V(0)e^{-\lambda_{222}t}$	11	$19600 \pm 4.0 \%$	$0.019 \pm 0.003$

Таблица III.4: Условия, при които са проведени калибровъчните облъчвания. Проведени са две сесии - 1 и 2, като във втората сесия са облъчвани и нови (2а) и използвани (2б) дискове. Температурата и при двете сесии е около  $22^\circ\text{C}$ , а дълбочината на ецване  $80 \mu\text{m}$ . Даден е средният по всички дискове в групата калибровъчен коефициент и неговото стандартно отклонение.

В лаборатория „Дозиметрия и лъчезащита“ бяха проведени две калибровъчни сесии - по-дълго облъчване при отворена система, при което бяха експонирани само нови дискове и по-кратко при затворена система, при което бяха експонирани нови и използвани дискове. Условията на облъчването и средните калибровъчни коефициенти са дадени в Таблица III.4. Неопределеностите на средните коефициенти са оценени като стандартно отклонение на калибровъчните коефициенти на дисковете от съответната група. Спрямо него неопределеността на всеки отделен калибровъчен коефициент е пренебрежима.

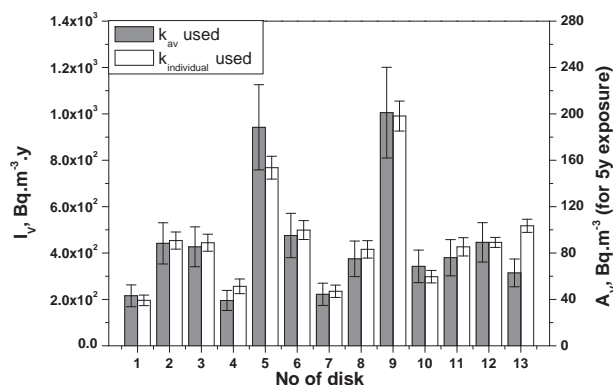
Вижда се, че средните калибровъчни коефициенти на новите дискове, облъчени в кратката и в дългата сесия, съвпадат в рамките на неопределеностите си. Това е експериментално доказателство, че  $CF$  не зависи от продължителността и режима на облъчване (постоянна или експоненциално намаляваща активност). Теоретичното доказателство на това твърдение е представено в Приложение А.3. Получените експериментални резултати показват, че облъчването на компакт-дискове може да се реализира в рамките



Фигура III.15: Калибровъчни коефициенти, получени при калибрирането на различни дискове: (а) нови CD/DVD, облъчени в две сесии - съответно означени с 1 и 2а в Таблица III.4; (б) използвани CD, облъчени в сесия 2б от таблицата. Температурата и при двете сесии е около  $22^\circ\text{C}$ , а дълбочината на ецване  $80 \mu\text{m}$ . Линиите маркират средния по всички дискове калибровъчен коефициент и границите на доверителния интервал, в който попада той при  $1\sigma$ .

на едно денонощие, стига да е възможно да се постигнат необходимите нива на референтната обемна активност на радона. Освен това, резултатите в Таблица III.4 показват, че средните калибровъчни коефициенти на новите и на използваните дискове съвпадат. Това е още една индикация, че нямаме основание да смятаме, че материалът на дисковете старее и променя свойствата си на твърдотелен детектор на следи.

Въпреки съответствието между средните калибровъчни коефициенти на дисковете от различните групи, между индивидуалните калибровъчни коефициенти се наблюдават съществени разлики. Резултатите получени за  $CF$  на новите дискове, облъчени в двете сесии са показани на Фиг. III.15а. Тъй като сред тях има дискове от една и съща марка, но с различаващи се калибровъчни коефициенти, нямаме основание да свържем стойността на  $CF$  с марката. На Фиг. III.15б са представени индивидуалните калибровъчни коефициенти на използваните дискове. Голяма част от тях са музикални дискове, произведени в България, на които не е означен производителя на самия диск, т.е. не съответстват по марка на новите дискове. От фигурите се вижда, че има отделни дискове, при които стойността на  $CF$  значително се различава от средната. Максималните наблюдавани относителни разлики спрямо средната стойност са  $+30\%$  и  $-45\%$ . Използването на предварително определен среден калибровъчен коефициент може да доведе до грешки в оценката за обемната активност. Това е илюстрирано на Фиг. III.16, на която са показани резултати за интегрираните обемни активности, получени от реални дискове облъчени в жилища в с. Елешница. В този случай грешките са от  $2\%$  до  $40\%$ .



Фигура III.16: Резултати за интегрираните обемни активности на радона, получени чрез среден калибровъчен коефициент, определен за нови дискове (в сиво) и чрез индивидуален калибровъчен коефициент (в бяло), определен при *a posteriori* калибриране на реалните дискове. Скалата отлясно показва обемните активности, на които съответстват резултатите при 5 години облъчване.

Представените резултати са сериозен аргумент в полза на *a posteriori* калибрирането, особено в случаи, в които обемната активност на радона в дадено жилище се оценява само на базата на един изследван диск. От лъчезащитна гледна точка, най-неблагоприятният вариант е да се използва средния калибровъчен коефициент за диск с много по-малък калибровъчен коефициент и да се подцени обемната активност на радона. Избраният от нас подход е следният - да се направи първоначална оценка на базата на среден калибровъчен коефициент ( $CF_{av} = 0.020 \pm 0.003 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{kBq}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ ). В случай, че обемните активности не надвишават  $40 \div 50 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$  е допустимо тази оценка да се използва, за да се спести време при мащабна кампания. Тъй като до този момент не сме наблюдавали калибровъчни коефициенти повече от 2 пъти по-ниски от средния, се очаква, че това няма да доведе до пропускане на сгради с радонов проблем. В случаите, когато ретроспективните измервания се провеждат с цел епидемиологични проучвания е коректно всеки от дисковете да се подложи на *a posteriori* калибриране. Дори тогава, предварителната оценка на база на среден калибровъчен коефициент е важна, тъй като помага да се планира калибровъчното облъчване.

Получените чрез описаната процедура калибровъчни коефициенти са валидни при:

- Дълбочина на ецване, равна на тази при калибрирането  $d_0$ . В случай на малка разлика може да се приложи корекция, аналогична на описаната по-горе.
- Температура на облъчване при измерванията равна на температурата при калибрирането  $T$ . При дискове облъчени в жилища приемаме, че средната стайна температура е близка до стайната температура на калибровъчното облъчване. Тъй като обаче, стайната температура варира е необходимо да се разшири неопределеността на оценката на обемната активност, за да се отчетат тези вариации. Това е демонстрирано

В следващата част.

### III.4 Оценка на обемната активност и комбинираната и неопределеност. Диапазон на компакт-дисковия метод.

Средната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  за периода, през който е съхраняван диска се определя като:

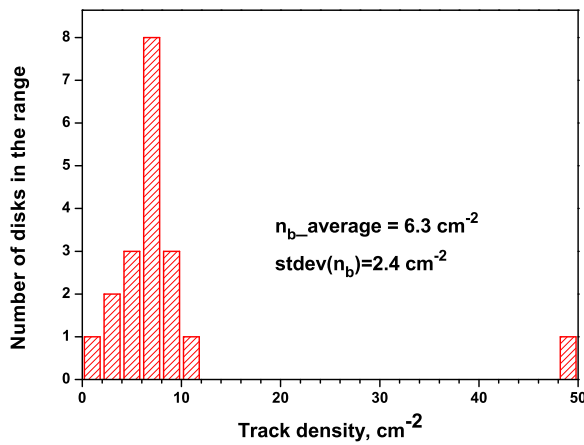
$$\overline{A_V} = \frac{n_{\text{net}}(d_0)}{T_{\text{exp}}CF(d_0)} = \frac{n_{\text{base}}(d_0) - n_{\text{bg}}(d_0)}{CF(d_0) \cdot T_{\text{exp}}}, \quad (\text{III.29})$$

където  $T_{\text{exp}}$  е времето на съхранение на диска,  $n_{\text{base}}$  е проявената плътност на трековете на дълбочина  $d_0$ , а  $n_{\text{bg}}$  е фоновата плътност на трековете.

В случай, че плътността на трековете е проявена на дълбочина  $d_2$ , различна от  $d_0$ , при която е определен калибровъчният коефициент, към  $n_{\text{base}}$  може да се приложи корекция (уравнение III.21). В случай, че калибровъчният коефициент е оценен за температура, различна от температурата на облъчване, към него може да се приложи коригиращ множител  $C_T$ . Температурната корекцията може да се оцени теоретично, както е показано в литература [75]. При дискове облъчени в жилища приемаме, че средната стайна температура е близка до температурата на калибровъчното облъчване и  $C_T = 1$ . Вариациите в стайната температура могат да се отчетат като се разшири неопределеността на обемната активност чрез отчитане на неопределеността на  $C_T$ . След прилагане на корекциите, уравнение III.29 приема вида:

$$\overline{A_V} = \frac{n_{\text{base}}(d_2)C_{d,2,0} - n_{\text{bg}}(d_0)}{T_{\text{exp}}CF(d_0)C_T}. \quad (\text{III.30})$$

При реални измервания фоновата плътност е неизвестна, т.е. не е известно каква е била плътността на трековете, когато дискът е бил придобит от собствениците си. Непознаването на фоновия сигнал е проблем, характерен за ретроспективните методи. При тях историята на облъчване на използвания „предмет-свидетел“ по правило е неизвестна, тъй като тази история започва преди придобиването на предмета от собствениците му, а предварителното (фоново) облъчване е неизвестно. За да се оценят мащабите на този проблем при компакт-дисковия метод и да се определи препоръчителна стойност за  $n_{\text{bg}}$ , бе изследвана фоновата плътност в нови дискове.



Фигура III.17: Разпределение на плътностите на трековете при ецване на различни нови дискове на дълбочина  $80 \mu\text{m}$ . При оценката на средната стойност и стандартното отклонение е изключен диска, за който  $n_{\text{bg}} = 49.5 \text{ tr.cm}^{-2}$ .

### III.4.1 Изследване на фоновата плътност на трековете

Основната цел на изследването е да се направи оценка за типичните стойности на плътността на трековете в нови (неизползвани) дискове. Освен това е необходимо да се оцени количествено грешката в оценката на обемната активност, до която би могла да доведе неизвестната фоновата плътност. Коректният подход към тези проблеми е статистическият, т.е. да се изследва разпределението на плътността на трековете в нови дискове. (Нямаме основание да считаме, че това разпределение е нормално, тъй като то ще зависи от обемната активност на радона в сградите, в които се съхраняват/продават дисковете. Изследвания в различни страни са показали, че обемната активност на радона в сгради в даден район/страна може да се опише с лог-нормално разпределение [8].) Изследването на това разпределение изисква обработка на голям брой (стотици) дискове, като не трябва да има условия за корелация между плътностите на трековете в отделните дискове. Това означава, че дисковете не трябва да са били на едно и също място. Тъй като при изследванията на калибровъчните коефициенти не бе установена зависимост от марката, изследването може да включва и дискове от една и съща марка. Същевременно, изследването трябва да обхване възможно най-голям брой различни марки дискове, включително аудио и видео дискове. Такова изследване би било много мащабно и трудно би могло да се гарантира, че то ще обхване представителна извадка от дискове.

Направеното от нас изследване бе значително по-малко. Деветнадесет нови диска (CD и DVD) от различни марки бяха купени от няколко различни места. Те бяха прецвани до  $80 \mu\text{m}$  и ецвани според процедурата, описана в част III.1. Фоновата плътност на трековете на дълбочина  $80 \mu\text{m}$  под повърхността им е представена на Фиг. III.17. Оценената средна стойност е  $n_{\text{bg}}^{av} = 6.3 \pm 2.4 \text{ tr.cm}^{-2}$ .



Подходът към гореописаните проблеми е следният:

- Приема се, че фоновата плътност на трековете във всеки диск при  $d = 80 \mu\text{m}$  е равна на средната стойност, оценена при изследването -  $6.3 \text{ tr.cm}^{-2}$ . Абсолютната неопределеност на  $n_{\text{bg}}$  се приема за равна на оцененото стандартно отклонение от  $2.4 \text{ tr.cm}^{-2}$ . Количествена оценка на обемната активност се прави за всеки диск, при който  $n_{\text{base}}(d = 80) > n_{\text{bg}}$ .
- За оценка на грешката, до която би могла да доведе неизвестната фоновая плътност не е използван вероятностен подход (тъй като разпределението на  $n_{\text{bg}}$  е неизвестно), а подход, базиран на екстремните стойности. Грешката е оценена при най-голямата от наблюдаваните стойности на плътността на трековете  $n_{\text{bg}} = 49.5 \text{ tr.cm}^{-2}$  и при най-малката възможна  $n_{\text{bg}} = 0$ .
  - Нека истинската стойност на фоновата плътност на трековете е  $n_{\text{bg}}^{\text{true}} = 0$ . Тогава грешката в чистата плътност на трековете ще бъде  $\text{err}_{n_{\text{net}}} = n_{\text{bg}}^{\text{av}} - n_{\text{bg}}^{\text{true}} = 6.3 \text{ tr.cm}^{-2}$ . В този случай обемната активност ще бъде подценена. Грешката ще е толкова по-голяма колкото е по-малък калибровъчният коефициент на дадения диск. Нека калибровъчният коефициент е равен на минималния наблюдаван от нас калибровъчен коефициент  $CF = 0.011 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{kBq}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ . Тогава  $\text{err}_{A_{\text{v}}}^{(-)} = -65 \text{ Bq.m}^{-3}$  при едногодишно облъчване. Използването на дискове, облъчени по-малко от година не е препоръчително. Затова стойността  $65 \text{ Bq.m}^{-3}$  е всъщност оценка за максималната стойност на обемната активност, която би могла да бъде „пропусната“ при измерване. Можем да приемем тази стойност за долна граница на метода при едногодишно облъчване. При петгодишно облъчване  $\text{err}_{A_{\text{v}}}^{(-)} = -13 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Подценяване на обемната активност в тези абсолютни граници не крие опасност за пропускане на сериозен радонов проблем.
  - Нека максималната наблюдавана плътност на трековете е истинската, т.е.  $n_{\text{bg}}^{\text{true}} = 49.5 \text{ tr.cm}^{-2}$ . В този случай грешката би била максимална когато дискът не е реално облъчен, по-точно  $A_{\text{v}}^{\text{true}} \rightarrow 0$ . Чистата плътност на трековете, оценена на базата на  $n_{\text{bg}}^{\text{av}}$  ще бъде  $n_{\text{net}} = n_{\text{bg}}^{\text{true}} - n_{\text{bg}}^{\text{av}} = 43.2 \text{ tr.cm}^{-2}$ . При едногодишно облъчване и  $CF = 0.011 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{kBq}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  това съответства на  $\text{err}_{A_{\text{v}}}^{(+)} = 448 \text{ Bq.m}^{-3}$ . В този случай действително може да се получи „фалшив сигнал“ за радонов проблем. В практиката при наличие на сигнал за проблем винаги се правят допълнителни измервания на базата на поне още 1-2 диска с различен произход, облъчени за по продължително време ( $T_{\text{exp}} \geq 5$  години). Чрез тези допълнителни измервания се получава информация дали има реален проблем.

На базата на тези разглеждания може да се приеме, че използването на фонова плътност на трековете  $n_{bg} = 6.3 \text{ tr.cm}^{-2}$  няма да доведе до сериозни грешки дори при екстремни стойности на истинската фонова плътност. При работа с по-стари дискове се допуска по-малка грешка.

### III.4.2 Оценка на неопределеността на обемната активност

Комбинираната относителна неопределеност на  $\overline{A_V}$  може да се представи като:

$$\delta_{\overline{A_V}} = \sqrt{\delta_{net/CF}^2 + \delta_{T_{exp}}^2 + \delta_{C_T}^2}, \quad (\text{III.31})$$

където с  $\delta_{net/CF}^2$  е означена неопределеността на отношението  $\frac{n_{net}}{CF}$ . По-долу са разгледани два отделни случая, в зависимост от това дали  $n_{net}$  и  $CF$  са корелирани или не. За всеки от случаите, последните две компоненти в горния израз са независими от останалите и се оценяват като:

- $\delta_{T_{exp}}$  - неопределеност на времето на облъчване. Обикновено това време се определя на база на информация, получена от собственика на диска, която се сравнява с датата на производство или датата на запис на диска, ако са известни. По този начин за по-старите дискове (с възраст над 5 години) е възможно да се постигне  $\delta_{T_{exp}} \leq 10 \%$ , но за по-новите в отделни случаи  $\delta_{T_{exp}}$  достига 50 %.
- $\delta_{C_T}$  - отчита вариации в температурата на облъчване. Проведените от нас калибровъчни облъчвания са при температура 22 °C. Очаква се средната стайна температура да е около тази стойност. Ако приемем, че температурата на облъчване типично варира в интервала 18 ÷ 26 °C, то спрямо референтната температура от 22 °C вариациите в калибровъчния коефициент ще са от +14 % до -15 % при дълбочина на ецване 80  $\mu\text{m}$  и от +26 % до -22 % при дълбочина на ецване 120  $\mu\text{m}$ . Оценките са направени на база на теоретичния модел, предложен в литература [75].

#### III.4.2.1 Неопределеност на $\overline{A_V}$ при прилагане на независимо определен $CF$

Когато прилаганият коефициент е определен независимо, без да се използва информация за плътността на трековете в дадения диск,  $n_{net}$  и  $CF$  са независими и  $\delta_{net/CF} = \sqrt{\delta_{net}^2 + \delta_{CF}^2}$ . Двете компоненти се оценяват като:

- $\delta_{CF}$  - неопределеност на калибровъчния коефициент. Тук също могат да бъдат разграничени два случая. При първия се прилага предварително оценения среден калибровъчен коефициент  $CF_{av} = 0.020 \pm 0.003 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{kBq}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ . Съответно  $\delta_{CF_{av}} = 15 \%$ .

Другият случай, в който се изпозва независимо определен калибровъчен коефициент, е когато се налага да се работи с по-голям брой дискове от една марка и една партида (например при провеждане на междулабораторни сравнения, т.нар. „blind tests“ и др.). Тогава, за да не се калибрира отделно всеки диск, се използва калибровъчен коефициент, определен *a posteriori* за един или няколко от тях. Досегашният ни опит показва, че този коефициент може да се приложи за останалите дискове от партидата, като неопределеността му се оценява както е показано в III.3.2.2 и типично  $\delta_{CF} \leq 8.4 \%$ .

- $\delta_{net}$  - неопределеност на чистата плътност на трековете. Като се има предвид, че  $n_{net}(d_0) = n_{base}C_{d,2,0} - n_{bg}$ , относителната неопределеност е:

$$\delta_{n_{net}} = \sqrt{\frac{n_{base}^2 C_{d,2,0}^2 (\delta_{n_{base}}^2 + \delta_{C_{d,2,0}}^2) + \sigma_{n_{bg}}^2}{(n_{base} C_{d,2,0} - n_{bg})^2}}, \quad (III.32)$$

където  $\delta_{n_{base}} = \sqrt{\frac{1}{n_{base} S_{base}}}$ . От разглежданията в предишната част типично  $C_{d,2,0} \leq 1.094$  при  $|d_1 - d_0| \leq 5 \mu\text{m}$  и  $\sigma_{C_{d,2,0}} \leq 0.036 \%$  при  $\sigma_d \leq 2 \mu\text{m}$ . Очевидно  $\delta_{n_{net}}$  е по-висока при по-ниски стойности на  $n_{base}$ . Ако  $n_{base} = 40 \text{ tr.cm}^{-2}$  (съответства на около  $44 \text{ Bq.m}^{-3}$  за 5 у облъчване при калибровъчен коефициент, равен на средния) и  $S_{base} = 5 \text{ cm}^2$ , то  $\delta_{n_{net}} \leq 11 \%$ .

### III.4.2.2 Неопределеност на $A_V$ при прилагане на индивидуален $CF$

При прилагане на индивидуален калибровъчен коефициент  $n_{net}$  и  $CF$  са корелирани. Явният вид на  $\overline{A_V}$  е:

$$\overline{A_V} = \frac{n_{net}(d_0)}{T_{exp} CF(d_0)} = \frac{I_{ref}(n_{base}(d_2)C_{d,2,0} - n_{bg}(d_0))}{T_{exp} C_T (n_{cal}(d_1)C_{d,1,0} - n_{base}(d_2)C_{d,2,0})}. \quad (III.33)$$

Въвеждаме означението:

$$\delta_{trdens} = \delta \left( \frac{n_{base}(d_2)C_{d,2,0} - n_{bg}(d_0)}{n_{cal}(d_1)C_{d,1,0} - n_{base}(d_2)C_{d,2,0}} \right). \quad (III.34)$$

и тогава:

$$\delta_{\overline{A_V}} = \sqrt{\delta_{trdens}^2 + \delta_{I_{ref}}^2 + \delta_{T_{exp}}^2 + \delta_{C_T}^2}. \quad (III.35)$$

За простота на разглежданията пренебрегваме неопределеността на  $n_{bg}$  (като можем да приемем, че при измервания с лъчезащитна цел индивидуално калибриране

не се провежда при ниски  $n_{\text{base}}$ ). В този случай, от формулата за разпространение на неопределеностите следва:

$$\delta_{\text{trdens}} = \frac{1}{1 - \left(\frac{n_{\text{base}} C_{d,2,0}}{n_{\text{cal}} C_{d,1,0}}\right)} \sqrt{\delta_{n_{\text{base}}}^2 + \delta_{C_{d,2,0}}^2 + \delta_{n_{\text{cal}}}^2 + \delta_{C_{d,1,0}}^2}. \quad (\text{III.36})$$

Уравнение III.36 е изведено при предпоставката, че плътностите на трековете и в оригиналното и в използваното за калибриране парче се коригират, за да се преведат към дълбочина  $d_0$ . Вместо тази корекция, плътността на трековете в едното парче може да се приведе към дълбочината, на която е проявено другото, което ще намали относителната неопределеност. Тогава може да се приеме условието, че плътността на трековете на парчето, ецвано на по-голяма дълбочина се привежда към дълбочината, на която е ецвано другото парче. Това ще доведе до по-малка относителна неопределеност спрямо обратния случай. Нека  $d_2 \geq d_1$ , тогава неопределеността може да се представи като:

$$\delta_{\text{trdens}} = \frac{1}{1 - \left(\frac{n_{\text{base}}}{n_{\text{cal}} C_{d,1,2}}\right)} \sqrt{\frac{1}{n_{\text{base}} S_{\text{base}}} + \frac{1}{n_{\text{cal}} S_{\text{cal}}} + \delta_{C_{d,1,2}}^2}. \quad (\text{III.37})$$

Препоръчително е да се работи при  $\frac{n_{\text{base}}}{n_{\text{cal}} C_{d,1,2}} \leq 0.5$ . Тъй ако  $n_{\text{base}} = 400 \text{ tr.cm}^{-2}$  и горното отношение е точно 0.5, и  $\delta_{C_{d,2,0}} = 5.4 \%$  (максималната стойност е при  $\sigma_d = 3 \mu\text{m}$  и  $d_2 - d_1 = 0$ , тъй като  $C_{d,2,0} \geq 1$ ), то  $\delta_{\text{trdens}} = 14 \%$ . Ако  $n_{\text{base}} = 100 \text{ tr.cm}^{-2}$  и горното отношение е под 0.2 и  $\delta_{C_{d,2,0}} = 3.6 \%$  (при  $\sigma_d = 2 \mu\text{m}$  и  $d_2 - d_1 = 0$ ), то  $\delta_{\text{trdens}} = 7.6 \%$ .

Типичните и максимални стойности на компонентите на неопределеността на  $\overline{A_V}$  са систематизирани в Таблица III.5. Дадена е и оценката за комбинираната относителна неопределеност. Тя показва, че при индивидуално калибриране на дисковете в повечето случаи може да се постигне неопределеност на средната обемна активност до 20 %. За всеки конкретен диск обаче, неопределеността трябва да се оценява индивидуално. Препоръчително е калибровъчното облъчване да се планира след като парче от диска е обработено, за да се изберат условия (активност, дълбочина на ецване), осигуряващи минимална неопределеност. По правило, по-подходящи са по-стари дискове, стига възрастта им да е добре известна. Използването на стари дискове намалява неопределеността и възможността за грешки, дължащи се на неизвестна фонова плътност. Освен това, информацията за обемната активност, усреднена за по-дълъг минал период е по-важна от лъчезащитна и най-вече от дозиметрична гледна точка.

Тип <i>CF</i>	Компонента	Типична, %	Макс., %	Коментар
Среден	$\delta_{CF}$	15	-	Типична - 44 Bq.m <sup>-3</sup> за 5 y
Среден	$\delta_{net}$	11	при $n_{net} \rightarrow 0$	
Среден	$\delta_{net/CF} = \sqrt{\delta_{CF}^2 + \delta_{net}^2}$	19		
Индивид.	$\delta_{trdens}$	8		14
Индивид.	$\delta_{Iref}$	5	10	
Индивид.	$\delta_{net/CF} = \sqrt{\delta_{trdens}^2 + \delta_{Iref}^2}$	9	17	
Среден/ Индивид.	$\delta_{Texp}$	10	50	Макс. - облъчвания 1-2 y
Среден/ Индивид.	$\delta_{CT}$	15	26	Типична - $d = 80 \mu m$ , Макс. - $d = 120 \mu m$
<b>Среден <i>CF</i></b>				
	$\delta_{Av} = \sqrt{\delta_{net/CF}^2 + \delta_{Texp}^2 + \delta_{CT}^2}$	26	60	
<b>Индивидуален <i>CF</i></b>				
	$\delta_{Av} = \sqrt{\delta_{net/CF}^2 + \delta_{Texp}^2 + \delta_{CT}^2}$	20	60	

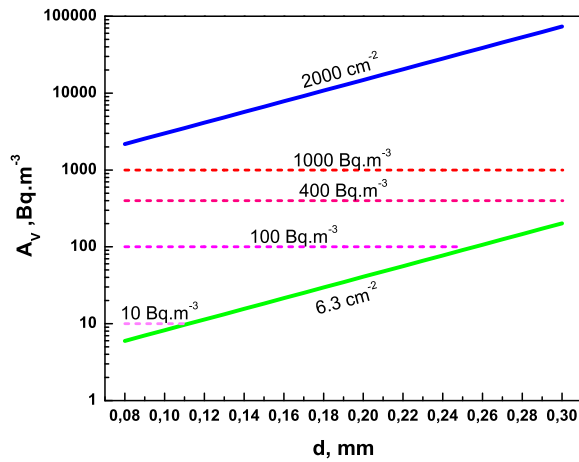
Таблица III.5: Относителна неопределеност на средната обемна активност на радона, определена чрез измервания с дискове (без прилагане на температурна корекция). Разгледани са случаите, в които се използва среден и индивидуален калибровъчен коефициент. Неопределеността при използване на среден *CF* е малко по-висока, тъй като в нея е включена компонента, отчитаща разпределението на стойностите на *CF* за различни дискове. Типичната неопределеност на резултатите от CD-метода е 20 % при индивидуално калибриране. Максималната неопределеност е оценена на 60 % и тя се дължи основно на недобро датиране на дисковете.

### III.4.3 Диапазон на метода

Представената по-долу оценка за диапазона от обемни активности, за които е приложим компакт-дисковия метод е само предварителна. Във всеки конкретен случай на измерване, диапазонът от интегрирани по времето обемни активности, за които биха могли да се дадат количествени резултати е различен. Например, при дискове с по-нисък калибровъчен коефициент диапазонът е изместен към по-високи стойности.

Долната граница на метода зависи от фоновата плътност на трековете, която е неизвестна. Както бе коментирано, в настоящата работа е възприет следния подход: за долна граница се счита максималната обемна активност, която може да бъде „пропусната“ (т.е. приета за нулева), поради използването на средна фонова плътност от 6.3 tr.cm<sup>-2</sup>.

Горната граница на метода се определя от обемната активност на радона, при която на дадена дълбочина се достига насищане (т.е. се достига плътност на трековете, над която те не могат да бъдат преброени надеждно). Както беше коментирано в III.2, тази граница на плътността на трековете зависи от конкретната техника на броене. За



Фигура III.18: Диапазон на CD-метода при различни дълбочини на ецване. Плътните линии маркират долната и горната граница на обемната активност. Типично обемната активност на радона в жилища е в диапазона  $10 \div 100 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Препоръчаната от Комисията на Европейската Общност референтна обемна активност в съществуващи жилища е  $400 \text{ Bq.m}^{-3}$ , с тенденция за понижаването и. В много Европейски страни се предприемат незабавни мерки при нива, надвишаващи  $1000 \text{ Bq.m}^{-3}$ .

автоматично броене тя бе оценена на  $n_{\text{upper}} = 2000 \text{ tr.cm}^{-2}$ . Горната граница на обемната активност  $A_{\text{upper}}$  при дадена дълбочина  $d$  и време на облъчване  $T_{\text{exp}}$  се оценява като:

$$A_{\text{upper}}(d) = \frac{n_{\text{upper}}}{CF(d)T_{\text{exp}}}, \quad (\text{III.38})$$

като тук фоновата плътност се пренебрегва спрямо  $n_{\text{upper}}$ .

В част II.3 бе показано, че калибровъчният коефициент намалява експоненциално с дълбочината. Следователно  $A_{\text{upper}}$  нараства експоненциално с дълбочината. Именно това се използва за увеличаване на горната граница на метода - насищането се избягва с ецване на по-големи дълбочини.

На Фиг.III.18 е показан диапазонът, за който методът е приложим при различни дълбочини на ецване за време на облъчване 5 години. Оценката е на база на средния калибровъчен коефициент при дълбочина  $80 \mu\text{m}$  ( $CF = 0.020 \text{ cm}^{-2}.\text{kBq}^{-1}.\text{m}^3.\text{h}^{-1}$ ). Както се вижда, поликарбонатният метод, комбиниран с автоматично броене е приложим от няколко  $\text{Bq.m}^{-3}$  до почти  $100 \text{ kBq.m}^{-3}$  при ецване до дълбочина  $300 \mu\text{m}$ . Тъй като дисковете са с достатъчно голяма дебелина, е възможно трековете да се проявят и на по-големи дълбочини. Това, обаче, не е необходимо при измервания в жилища, където стойности от порядъка на стотици хиляди  $\text{Bq.m}^{-3}$  са наблюдавани в единични случаи в света. Практически, методът обхваща целия диапазон от обемни активности на радона, наблюдавани в жилища.

## III.5 Резултати от проведени измервания.

През последните няколко години в лаборатория „Дозиметрия и лъчезащита“ сме реализирали около 400 ретроспективни измервания на  $^{222}\text{Rn}$  в жилища и обществени сгради чрез CD-метода. Тези измервания не са свързани с детайлно проучване на определена географска област или с епидемиологични изследвания. Първата им основна цел бе да се оцени работата на метода при реални условия - надеждни ли са резултатите и каква максимална информация може да се получи. Втората важна цел бе да се избере оптимален подход за прилагане на метода при провеждане на мащабни кампании - как и с колко души да се контактува, да се прилага ли индивидуално калибриране и т.н. Паралелно с това, в хода на изследванията бяха открити и сгради със сериозен радонов проблем. Резултатите от проведените измервания при реални условия са публикувани в литература [76, 108, 109, 110] и са обобщени в настоящата част. Те се предхождат от резултати от първото международно сравнение, в което участва компакт-дискният метод. Резултатите от такива сравнения са изключително важни за оценяване качеството на работа на всеки метод.

### III.5.1 Резултати от международно сравнение

Компакт-дискният метод беше тестван в рамките на „сляпо“ сравнение по измерване на радон с пасивни детектори, организирано от Health Protection Agency (HPA), UK (детайли за начина на провеждане на сравнението са представени в литература [111]). Компакт дискове бяха облъчени от HPA и ни бяха изпратени по пощата. Предоставената ни предварителна информация беше, че дисковете са обособени в четири групи от по десет диска - три облъчени при различни обемни активности и една необлъчена. Не беше предоставена информация кои дискове в коя група са и какви са интегрираните обемни активности, при които са проведени облъчванията. Дисковете бяха обработени според процедурата, описана в III.1. Тъй като всички дискове бяха от една марка и партида, за оценка на калибровъчния им коефициент 8 диска бяха калибрирани *a posteriori*. Индивидуалните калибровъчни коефициенти на осемте диска съвпаднаха в рамките на неопределеностите си и средната им стойност бе използвана при понататъшния анализ. Оценените от нас стойности на интегрираната обемна активност на радона са показани в Таблица III.6 заедно с референтните стойности, обявени по-късно от HPA. Както се вижда, стойността, оценена чрез дисковете в група 3, съвпада с референтната стойност в рамките на оценената неопределеност. Стойността за дисковете в група 2 е под долната граница на метода, оценена на база на фоновата плътност на конкретната група дискове. Стойността за дисковете в група 1 съвпада с референтната, но тъй като е близо до долната граница ре-

зултатът е оценен с голяма неопределеност. Трябва да се има предвид, че това сравнение се организира за детектори за проспективни измервания с продължителност от няколко месеца до една година. Затова, интегрираните обемни активности, при които се провежда облъчването са сравнително ниски за компакт-дисквия метод, при който е желателно да се работи с облъчвания с продължителност поне няколко години. Обемната активност на радона, на която съответстват референтните стойности при 1 година облъчване е от 19 до 164 Вq.m<sup>-3</sup> (Таблица III.6). Резултатите от сравнението поткрепят твърдението, че компакт-дисквият метод дава адекватни резултати и може да регистрира наличие на радонов проблем дори при кратки времена на облъчване.

	$I_V, \text{kBq.m}^{-3}.\text{h}$		$A_V, \text{Bq.m}^{-3}$ При 1 година облъчване
	CD-метод	Референтна	
<b>Група 1</b>	321 ± 230	330	37.6
<b>Група 2</b>	< 210	165	18.8
<b>Група 3</b>	1188 ± 320	1436	164

Таблица III.6: Резултати от международно сравнение по измерване на радон във въздух. Дисквете са облъчени в три групи при три различни интегрирани обемни активности - дадените референтни стойности. Отляво на тях са представени, получените от нас стойности. В последната колонка са дадени стойностите на обемната активност, на която съответстват референтните при облъчване 1 година, което е най-краткото време при CD-метода.

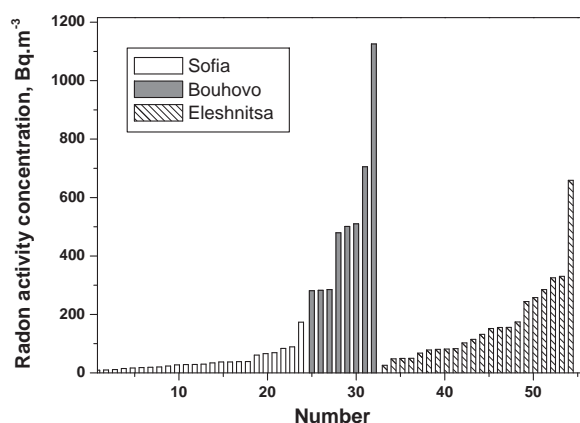
### III.5.2 Резултати от реални измервания

Повечето от измерванията са проведени в София, Варна или в райони в България с висок радонов риск - село Елешница и района на град Бухово. Село Елешница се намира в долина с висока естествена радиоактивност и е било център за уранодобив и уранопреработка. Предишни измервания в селото са показали повишени концентрации на закрито и на открито [112]. Районът на град Бухово е повлиян от уранодобива в миналото. По-голямата част от дисквете, събрани при изследването, са от жилища, докато останалите са от различни обществени сгради - училища, детска градина, хотел и няколко работни места. Дисквете са с голям брой различни марки и с възраст от 1 до 15 години.

### III.5.3 Резултати от реални измервания

Резултатите от пилотните ретроспективни измервания с дискове в тези райони са показани на Фиг.III.19. Вижда се, че стойностите, получени за с. Елешница и района на град Бухово са значително по-високи от стойностите, получени в другите райони. Разпределението на обемните активности в изследваните сгради в Елешница и Бухово е показано на





Фигура III.19: Резултати от ретроспективни измервания на радон в жилища в София, района на Бухово и Елешница, получени чрез СД-метода.

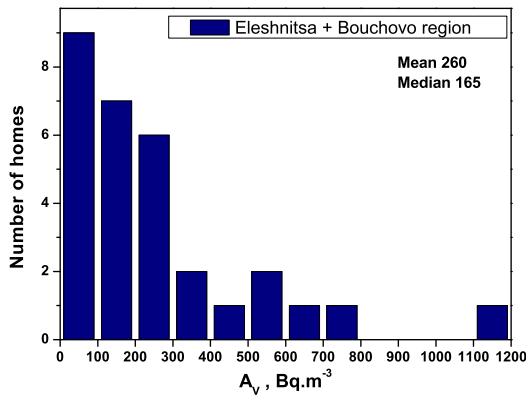
Район	Брой сгради	Обемна активност на радона, $Bq.m^{-3}$	
		Средно	Медиана (95 %CI)
София	24	41.1	29.5 (19.0÷38.7)
Варна	17	38.5	17.3 (13.8÷29.7)
Елешница	22	166.1	123.4 (78.4÷210.0)

Таблица III.7: Средна стойност и медиана на обемните активности на радона в жилища в София, Варна и Елешница. В скоби е даден и 95 % доверителен интервал на медианата.

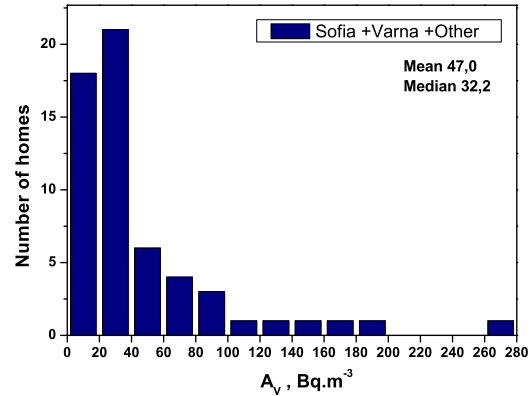
Фиг. III.20а. Въпреки малкия брой сгради, е ясно, че в много от тях радонът представлява проблем. За сравнение, разпределението на обемните активности в сгради в София и Варна е дадено на Фиг. III.20б. Средните стойности и медианите за изследваните сгради в трите града, от които са събрани най-много дискове (София, Варна и Елешница) са дадени в Таблица III.7. За медианата е даден и 95% доверителен интервал. Получената средна стойност за тези два града е близка до средната за света стойност от  $40 Bq.m^{-3}$  [113]. От друга страна, повечето проведени ретроспективни измервания в село Елешница и района на град Бухово дават резултат за обемната активност на радона, надвишаващ референтното ниво от  $100 Bq.m^{-3}$ , препоръчвано от Световната Здравна Организация [2]. Повишена обемна активност на радона (над  $500 Bq.m^{-3}$ ) бе открита в детската градина в село Горни Богров. По проект на Д. Пресиянов бе изградена активна противорадонова инсталация и обемната активност на радона бе свалена до около  $40 Bq.m^{-3}$ .

### III.5.3.1 Сравнение с резултати, получени чрез метода на дифузионните камери.

За 13 от изследваните обекта, намиращи се в с.Елешница, бе възможно резултатите от проведените ретроспективни измервания да се сравнят с тези от проспективни измервания, проведени в миналото на същите места. Единадесет от тези обекти са жилища, а два

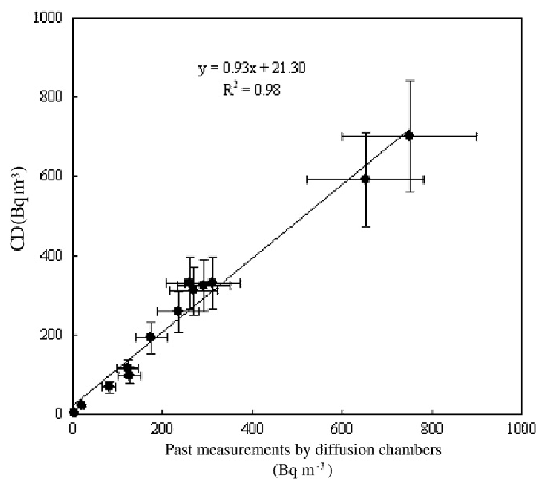


(a)

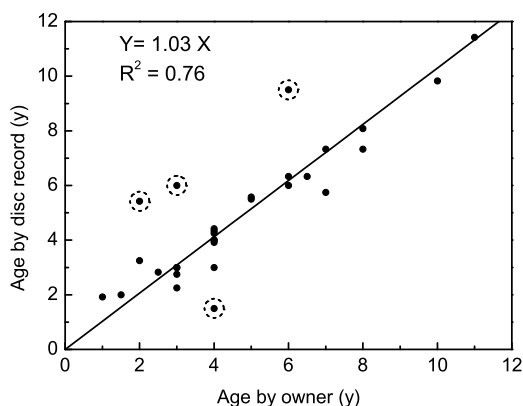


(б)

Фигура III.20: Разпределение на обемните активности на радон в жилища, оценени чрез CD-метода в: (а) райони с повишен радонов риск - района на Бухово и Елешница; (б) райони, в които не се очаква повишен риск - София, Варна и други. Дадени са средната стойност и медианата на представените данни.



Фигура III.21: Сравнение между обемните активности на радона, получени чрез ретроспективни измервания с дискове и проспективни измервания с дифузионни камери, правени в миналото. Правата е получена по метода на най-малките квадрати. Наблюдава се много добра корелация и ъглов коефициент близък до единица.

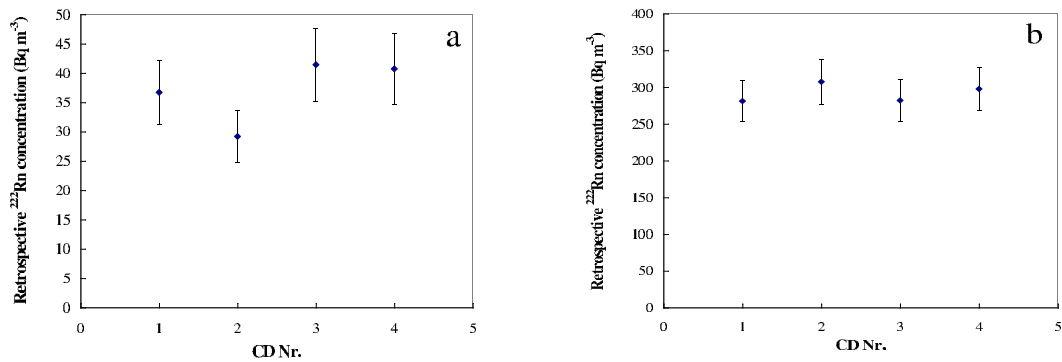


Фигура III.22: Сравнение между времето на облъчване на дисковете, оценено от собствениците им и това, определено на база на датата на производство/запис. Правата е получена по метода на най-малките квадрати, като са използвани всички представени данни. Оградени са точките, при които двата типа датирание се разминават значително.

са дворове. В дворовете дисковете са били окачени по дърветата като предпазна мярка срещу птиците. Измерванията, проведени в миналото са кумулативни измервания чрез дифузионни камери. Дифузионните камери са проследими до международен стандарт за  $^{222}\text{Rn}$  [114]. За сравнението бяха избрани такива дискове, които вече са били на даденото място по времето на измерванията с дифузионните камери. Беше проверено, че в никое от единадесетте жилища не е правен ремонт или промени в климатичната инсталация от придобиването на дисковете. Сравнението е показано на Фиг. III.21. Резултатите показват много добро съответствие между обемните активности, определени при ретроспективни измервания с дискове и при проспективни измервания с дифузионни камери.

### III.5.3.2 Датирание на дисковете

Най-честият подход за датирание на дисковете е базиран на информация, предоставена от собствениците им. За да се оцени вероятността за допускане на грешки при този субективен подход, беше тестван алтернативен начин за датирание. При него беше използвана или датата на производство на диска или най-старата дата на запис върху диска. Този подход не беше приложим за близо  $1/2$  от изследваните 65 диска, поради липсваща дата на производство или фиктивна дата на записите и също крие възможности за грешка. Затова той и „субективният“ подход бяха сравнени (Фиг. III.22). Резултатите (представени в литература [110]) показват, че няма систематични отклонения между информацията за възрастта, получена по двата метода и че в повечето случаи оценките съвпадат в рамките на 10 %. Въпреки това при 4 от използваните 32 диска се наблюдават значими отклонения.



Фигура III.23: Резултати от ретроспективни измервания с различни дискове от жилище с: (а) нормална обемна активност на радона; (б) повишена обемна активност.

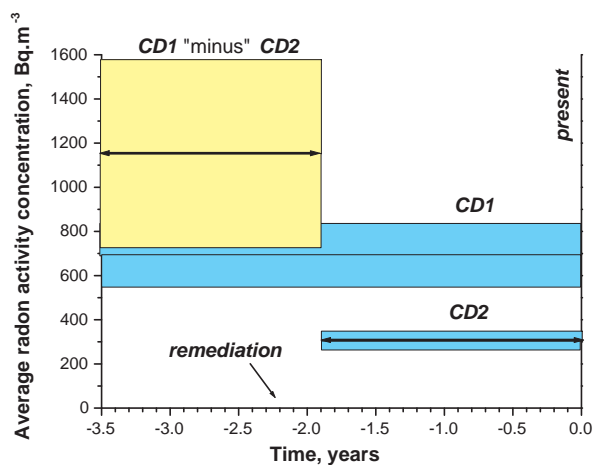
### III.5.3.3 Сравнение с резултати, получени чрез различни дискове в една сграда.

Както показва направеното сравнение, датирането на дисковете не е надеждно в 100 % от случаите - възможни са грешки в определянето на възрастта на диска, както и забравени подробности за съхранението му (например собствениците да са забравили, че дълго време даденият диск е бил в друга стая или сграда). Такива случайни грешки могат да се избегнат чрез анализ на повече от един диск от дадено място. В рамките на изследването проведохме сравнение между резултатите, получени чрез различни дискове от едно и също жилище. За целта, избирахме само жилища, в които не са правени ремонти или промени в климатичната инсталация от придобиването на дисковете. Датирането на дисковете винаги беше базирано на интервю с предоставящия ги човек.

На Фиг. III.23 са представени резултатите от две от жилищата - едното с нормална, а другото с повишена обемна активност на радона. Вижда се, че резултатите, получени от анализа на различни дискове, съвпадат в рамките на неопределеностите си. Добро съответствие се наблюдава и при останалите жилища/сгради, включени в това изследване. При изследването на една от двойките дискове, обаче, се установи съществена разлика между двата резултата. Този случай ни показва, че CD-методът може да регистрира значими скокове на обемната активност във времето, както е показано по-долу.

### III.5.3.4 Възможност за проследяване на резки промени в обемната активност на радона във времето.

Разминаващи се резултати за обемната активност на радона бяха получени при изследване на една от обществените сгради - лаборатория, в която се провеждат и радиационни измервания [109]. В тази сграда при предходни изследвания са установени високи обемни активности на радона, които са водели и до висок фонов сигнал при провеждането



Фигура III.24: Оценка на средната обемна активност на радона за минал период време чрез използване на два диска с различна възраст. Посочен е момента, в който в стаята е поставена изолираща настилка (преди закупуването на CD2). Запълнените области маркират оценените обемни активности  $\pm 1\sigma$ .

на радиационните измервания. Анализът на диск на възраст 3.5 години (CD1) доведе до резултат около два пъти по-голям от този, получен при анализа на диск, съхраняван в същата стая, на възраст 1.9 години (CD2). Оказа се, че преди вторият диск да бъде купен, в сградата са били взети мерки за снижаване на нивото на радона чрез поставяне на изолираща подова настилка. Разликата между интегрираните по времето обемни активност, получени чрез CD1 и CD2 е равна на интегрираната обемна активност на радона за периода между закупуването на CD1 и CD2. Тогава средната обемна активност преди поставянето на настилката се дава с:

$$\overline{A}_V(-T_{\text{exp}}^1, -T_{\text{exp}}^2) = \left( \frac{n_{\text{net}}^1}{CF^1} - \frac{n_{\text{net}}^2}{CF^2} \right) \frac{1}{T_{\text{exp}}^1 - T_{\text{exp}}^2}, \quad (\text{III.39})$$

където индексът 1 се отнася за CD1, а 2 за CD2. За конкретния случай, този подход е илюстриран на Фиг. III.24. По този начин е оценено, че настилката е довела до  $3,7 \pm 1,4$  пъти снижаване на обемната активност на радона в стаята. За сравнение, направените проспективни измервания са показали снижаване от около 3 пъти.

Този пример илюстрира възможността компакт-дисковият метод да регистрира съществени промени в нивата на радон, настъпили в миналото. Затова при жилища/сгради, в които са правени съществени реконструкции и ремонти е препоръчително да се анализират два различни диска - единия, придобит поне няколко години преди реконструкцията, а другия скоро след нея. Очевидно е, че неопределеността в  $\overline{A}_V(-T_{\text{exp}}^1, -T_{\text{exp}}^2)$  ще е толкова по-голяма, колкото е по-малка разликата  $T_{\text{exp}}^1 - T_{\text{exp}}^2$ . Например ако  $T_{\text{exp}}^1 = 10$  у и  $T_{\text{exp}}^2 = 5$  у и двете са известни с неопределеност 10 %, то неопределеността на  $\frac{1}{T_{\text{exp}}^1 - T_{\text{exp}}^2}$  ще бъде 30 %. Следователно, прилагането на тази техника изисква дискове с възможно най-голяма разлика във възрастта, които да бъдат датирани максимално точно.

Важно приложение на този подход е за оценка на ефективността на противорадонови инсталации. Същият подход би могъл да се използва при епидемиологични проучвания, за да изключи приноса на обемната активност през последните 5 години, които не допринасят за настоящия риск.

### III.5.3.5 Организация на измерванията

Преди да се стартира мащабно проучване на базата на CD-метода е необходимо да се прогнозира каква ще е събираемостта на дисковете - т.е. какъв процент от хората, с които е установен контакт, ще предоставят диск. Изследвахме събираемостта при две малки проучвания - във Варна и в София [110]. При тях бе установен личен контакт с участниците. Инструкциите към хората, събиращи дисковете (един във Варна и четирима в София) бяха:

- Да предоставят кратка информация за радона;
- Да уверят хората, че участието е безплатно, доброволно и анонимно и че при нужда могат да се консултират с експерти;
- Предоставят кратка информация за компакт-дискския метод. Да помолят за едно или повече CD/DVD, което да е поне на 1 година и което собствениците да могат да датират. Да не предлагат компенсации чрез подмяна с нов диск или заплащане.

Във Варна 16 от общо 50 души предоставиха дискове, а в София 53 от 106 (съответно 32 % и 50 %). Осем души във Варна категорично са отказали да участват, а в София не са срещнати категорични откази. На база на тези предварителни резултати може да се очаква, че между половината и една трета от хората биха предоставили дискове, ако с тях се контактува лично и им се предостави кратка информация. Трябва да се има предвид, че в България населението не е масово запознато с проблема, свързан с облъчване от радон в жилища. Събираемостта би могла да се увеличи, ако се проведат информационни кампании и ако проучванията се провеждат в сътрудничество с местната власт.

Освен това, проведените проучвания показаха, че без да са им дадени изрични инструкции повечето хора предоставят сравнително нови дискове. Средната възраст на дисковете от Варна (45 броя) бе  $5.0 \pm 3.8$  години, а на дисковете от София (77 броя) бе  $4.6 \pm 2.1$  години. Тази средна възраст съвпада и със средната възраст на дисковете от всички проведени от нас измервания -  $5.3 \pm 2.9$  години. Изводът е, че трябва да се искат по-стари дискове, особено когато измерванията се провеждат за целите на епидемиологични

проучвания. Установихме още, че когато дават повече от един диск, хората често избират дискове с близка възраст и еднаква марка (например дискове записвани заедно). За да се намали възможността за грешки е по-добре да се искат дискове с различна възраст и марка, за да са „некорелирани“ резултатите.

За първи път през 2010 бе и направен опит за дистанционно събиране на дискове. В професионален интернет форум (на преводачи) бе публикувано съобщение, предлагащо на заинтересованите да изпратят дискове за анализ. От 250 регистрирани участници във форума 30 изпратиха общо 150 диска по пощата. Пощенските разходи бяха за сметка на подателите и не бяха предлагани компенсации. Това показва, че събирането на дискове по пощата и съответно организирането на дистанционни кампании по измерване на радон в жилища/сгради е възможно да се реализира на практика.

Опитът, който събрахме при проведените пилотни измервания, ни позволи да формулираме най-важните стъпки от организирането на мащабни кампании по измервания на радон (Таблица III.8). Трябва да се отбележи, че тук не са разгледани организирането на информационни кампании и на мероприятия за снижаване на нивата на радона при установен проблем, които са много важна част от програмите за снижаване на риска от радон за населението.

<p><b>Събиране на дискове</b></p>	<p>Контактува се с поне 3 пъти повече от предвидените участници. Искат се дискове, по възможност, отговарящи на условията:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- да са придобити нови;</li> <li>- да са възможно по-стари;</li> <li>- поне 2 различни по марка и възраст диска;</li> <li>- ако е провеждан ремонт - един диск, придобит години преди и един диск, придобит непосредствено след ремонта.</li> </ul> <p>Събира се информация за:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- възрастта на дисковете;</li> <li>- различни стаи/сгради, в които са били.</li> </ul> <p>По възможност дисковете се изпращат по пощата.</p>
<p><b>Обработка на дисковете</b></p>	<p>Едно парче от всеки диск се подлага на СРЕ, ЕСЕ, сканиране и броене. Второ парче от някои дискове се ецва на друга дълбочина, ако те са съхранявани в необитавано и неотопляемо помещение, за да се проведе температурна корекция. За дисковете, подложени на индивидуално калибриране, по едно допълнително облъчено парче се обработва по стандартния начин.</p>
<p><b>Индивидуално калибриране</b></p>	<p>Включва облъчване, дегазиране и обработка на едно парче от дисковете. Проверява се в следните случаи:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- изследването е за целите на епидемиологично проучване;</li> <li>- от жилището/сградата е предоставен само един диск;</li> <li>- има несъответствие между резултатите от различните дискове;</li> <li>- резултатът за средната обемна активност е над <math>50 \text{ Bq.m}^{-3}</math>.</li> </ul>

Таблица III.8: Етапи от организиране на масови ретроспективни измервания на радон в жилища чрез CD-метода.



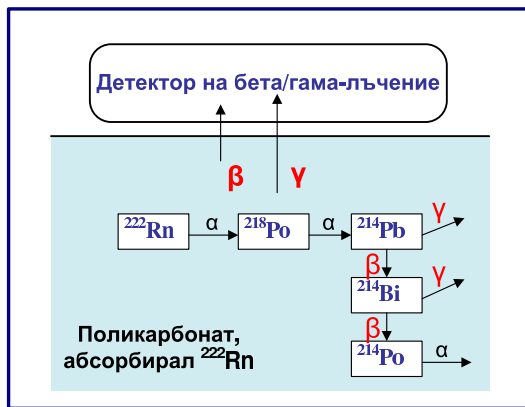
## Глава IV

# Измерване на $^{222}\text{Rn}$ във води чрез абсорбция в поликарбонати. Пилотни измервания на $^{226}\text{Ra}$ .

Втората основна цел на настоящата работа бе да се изследват възможностите за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води чрез абсорбция в поликарбонати. Както и при измерванията във въздух, основната идея бе да се използва фактът, че активността на абсорбирания в поликарбоната  $^{222}\text{Rn}$  и получените от него ДПП е свързана с външната обемна активност на радона. На тази база бяха предложени два различни подхода за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води.

При всеки от двата подхода първата стъпка представлява облъчване на поликарбонатен образец директно в изследваната вода. При първия подход след края на облъчването, образецът се измерва чрез подходящ детектор, който регистрира бета или гама-лъчение. При това измерване се регистрира бета/гама-лъчението на краткоживеещите дъщерни продукти на радона  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$  (схематично представено на Фиг.IV.1). Същият подход се прилага за измерване на радон в почвен газ [76, 108]. Освен това, бета/гама-измерванията на поликарбонатни образци могат да се прилагат и за измерване на други радиоактивни благородни газове ( $^{85}\text{Kr}$  и  $^{133}\text{Xe}$ ) във въздух [115]. В настоящата работа са представени първите изследвания, с които е проверена възможността, този подход да се прилага за измервания на радиоактивни благородни газове във вода (конкретно на  $^{222}\text{Rn}$ ). Впоследствие бе разработен и метод за измерване на  $^{85}\text{Kr}$  във вода, базиран на абсорбция в поликарбонати и бета или гама-измервания [116].

При втория подход [117] след края на облъчването се проявяват трековете от алфа-частици, формирани на дадена дълбочина под повърхността на поликарбонатния образец (детектор). Аналогично на разгледания в предната глава компакт-диск метод, определянето на плътността на трековете позволява да се оцени интегрираната по времето на облъчване обемна активност на радон във водата.



Фигура IV.1: Същност на експресния метод за измерване на радон във води: регистрира се сигналът от  $\beta/\gamma$ -лъчението на ДПР на радона, получени при разпадането на абсорбирания в поликарбоната радон. Сигналът е пропорционален на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водата.

В настоящата глава са представени методите за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води чрез абсорбция в поликарбонати, разработени въз основа на горните два подхода. Представени са калибровъчните експерименти, чрез които за всеки от методите е установена връзката между сигнала и обемната активност на радон във водата. Представени са и пилотни измервания на  $^{226}\text{Ra}$  във води, реализирани чрез ецване на алфа-трекове в облъчени поликарбонати. Оценени са възможностите на всеки от методите и са сравнени с тези на други методи за измерване на  $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$  във вода.

## IV.1 Метод за измерване на $^{222}\text{Rn}$ във води чрез абсорбция в поликарбонати и бета/гама-измервания.

Разработеният метод, публикуван в литература [118], включва следните стъпки:

- Облъчване на поликарбонатния образец - може да бъде направено директно във водоизточника или във водна проба.
- Измерване на поликарбонатния образец - методите за измерване, които сме използвали са общо бета-броене и гама-спектрометрия, като се регистрира лъчението на ДПР, получени от абсорбирания  $^{222}\text{Rn}$  (Фиг. IV.1).
- Оценка на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водата  $A_V$  чрез калибровъчен коефициент, определен за условия, идентични с тези при реалното измерване.

За да се определят факторите, влияещи върху калибровъчния коефициент, трябва да се разгледат процесите, които протичат в образца от началото на облъчването до края на измерването. Процесът, протичащ по време на облъчване, при който поликарбонатът абсорбира  $^{222}\text{Rn}$  от обкръжаващата го среда, наричаме сорбция. Обратният процес, протичащ след края на облъчването, при който поликарбонатът отделя  $^{222}\text{Rn}$  в обкръжаващата го среда, наричаме десорбция. От общи съображения е ясно, че сигналът при

измерване на поликарбонатен образец ще зависи от продължителността на облъчването ( $T_{\text{сорп}}$ -наричано още време за сорбция) и времето между края на облъчването и момента на измерването ( $T_{\text{десорп}}$ -наричано още време за десорбция). Необходимо е тези зависимости да се познават преди да се пристъпи към определяне на калибровъчни коефициенти, за да се изберат оптимални и коректни условия.

#### IV.1.1 Зависимост на сигнала от времената за сорбция и десорбция

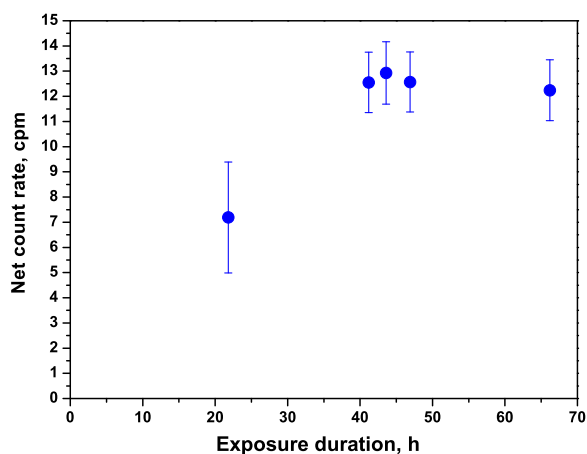
Първоначално тази зависимост бе изследвана експериментално, като бяха поставени две основни цели:

- Да се определи оптимално време за облъчване.
- Да се оцени коригиращ коефициент за десорбция между края на облъчването и измерването. Този коефициент се прилага, за да се приведе измерения сигнал към момента, в който се прекратява облъчването (т.нар. начален момент). Това е необходимо, тъй като практически не е възможно всички измервания да се провеждат в точно определен момент след края на облъчването. Освен, че би затруднило измерванията, това би изключило и възможността за провеждане на паралелни измервания.

Впоследствие бе разработен общ теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция на благородни газове (включително  $^{222}\text{Rn}$ ) в поликарбонатни образци. Този модел не е представен тук, тъй като детайлното изследване на тези процеси излиза извън обсега на настоящата работа. Едно от важните приложения на модела е описание на времевата зависимост на активността на  $^{222}\text{Rn}$  в тънки поликарбонатни пластинки по време на сорбция и десорбция. Извеждането на тази зависимост и явният и вид са представени в Приложение А.1 Част от представените тук експериментални резултати бяха използвани за валидиране на теоретичния модел.

##### IV.1.1.1 Оценка на оптималното време за облъчване

Както бе посочено по-горе, облъчването на поликарбонатните образци може да се проведе директно във водоизточника или във водна проба. В описаните в настоящата работа експерименти облъчването е проведено във водни проби, поставени в пластмасови двулитрови бутилки от „Кока-кола“. Чрез гама-спектрометрични измервания бе проверено, че по време на облъчването обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  в бутилките намалява според закона за радиоактивното му разпадане, т.е. бутилките са херметични по отношение на

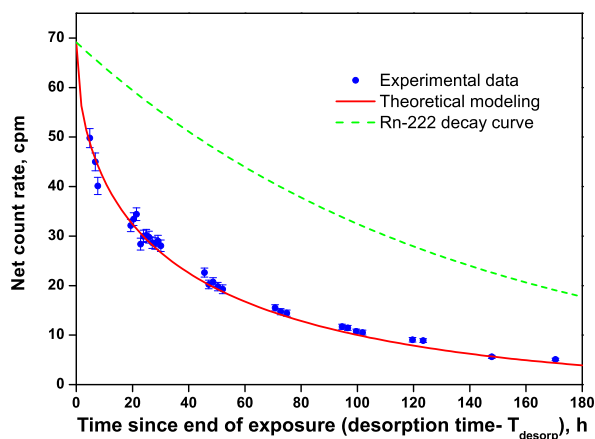


Фигура IV.2: Зависимост на сигнала, получен при общо бета-измерване на поликарбонатни пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$ , облъчени във вода, съдържаща  $^{222}\text{Rn}$  при температура  $20^\circ\text{C}$ , от продължителността на облъчването им.

радона. При тези условия е ясно, че по време на облъчването активността в поликарбоната нараства до определен момент, след което започва да намалява, поради намаляване на активността на  $^{222}\text{Rn}$  във водата. Тогава оптималното време за облъчване е времето, при което активността в поликарбоната е максимална.

Оптималното време за облъчване зависи от използвания поликарбонатен образец. При проведените експерименти бяха използвани тънки поликарбонатни пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$ . Облъчването бе проведено при температура около  $20^\circ\text{C}$ . За да се определи оптималното време за облъчване на тези образци в режим на експоненциално намаляваща външна активност, пет образца бяха облъчени в пет водни проби с една и съща обемна активност на радон за различно време. Точно определено време след края на облъчването всеки детектор бе измерен с нискофонова установка за общо бета-броене. На Фиг.IV.2 е дадена зависимостта на чистия сигнал от времето за облъчване на детекторите. Както се вижда, след първоначално нарастване, сигналът от детекторите е практически постоянен за времена на облъчване между 41 и 66 часа.

Впоследствие с помощта на компютърен код [119] бе проведено числено моделиране, на база на разработения теоретичен модел, описващ процесите на сорбция и десорбция. То показва че облъчването на пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$  при горните условия води до максимална абсорбирана активност при облъчване от 66 часа. Разликата между абсорбираната активност при облъчване от 41 и 66 часа е 5%. Предимството на използвания компютърен код е, че с него лесно може да се определи оптималното време на облъчване за образци с различни дебелини.

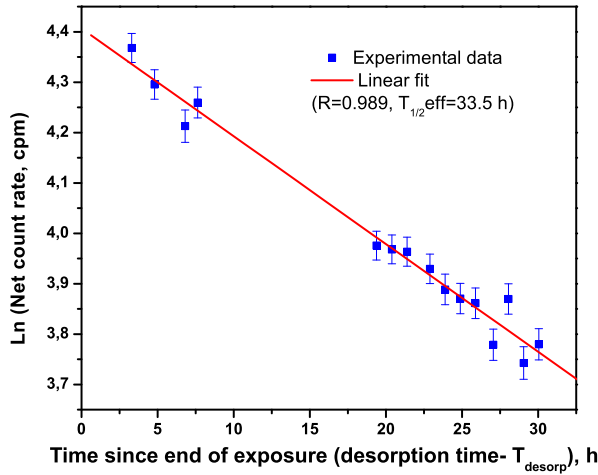


Фигура IV.3: Зависимост на сигнала от времето за десорбция при гама-спектрометрични измервания на поликарбонатни пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$ , облъчени за 48 часа във вода, съдържаща  $^{222}\text{Rn}$  при температура  $20^\circ\text{C}$ . Представени са получените скорости на броене в пика на пълно поглъщане на линията на  $^{214}\text{Pb}$  с енергия  $295 \text{ keV}$  и неопределеността им ( $1 \sigma$ ). Плътната линия е теоретичната зависимост. Пунктираната линия описва спадането на активността на  $^{222}\text{Rn}$ , поради радиоактивното му разпадане.

#### IV.1.1.2 Оценка на коригиращ коефициент за десорбция

При проведените експерименти отново са използвани поликарбонатни пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$ . Те са облъчени за 48 часа във вода, съдържаща радон, при температура  $20^\circ\text{C}$ . След облъчването чрез общо бета-броене и чрез гама-спектрометрични измервания бе проследен сигнала от детекторите през първите 170 часа след облъчването. Така е получена зависимостта на сигнала от времето на десорбция. За гама-спектрометрични измервания тази зависимост е представена на Фиг. IV.3. Аналогична зависимост е получена и при измерванията чрез общо-бета броене. На фигурата не са представени резултатите от измерванията през първите няколко часа след облъчването, които включват компонента, дължаща се на полепнали по повърхността на поликарбоната ДПР. След около три часа може да се счита, че те са се разпаднали напълно и сигналът се дължи само на ДПР, получени от абсорбирания радон. В интервала между първите три часа и 30-40 час спадането на сигнала може да се опише добре с единична експонента. Подобно поведение е наблюдавано и от други автори, разглеждали десорбция на радон от поликарбонатни пластинки, облъчени във въздух [65]. Разработеният впоследствие теоретичен модел [74], показва че зависимостта се описва от безкрайна сума от експоненти (виж Приложение А.1). На Фиг. IV.3 експерименталните резултати са сравнени със зависимостта, получена от числения код [119], базиран на предложения теоретичен модел. Вижда се, че теоретичната зависимост описва много добре получените експериментални резултати. Представените на Фиг. IV.3 резултати бяха използвани при едно от сравненията, доказващи валидността на модела [74].

За оценка на коригиращия коефициент, който трябва да бъде използван, за да се приведе сигнала към начален момент (т.е. към  $T_{\text{desorp}} = 0$ ) бе приложен феноменологичен



Фигура IV.4: Зависимост на сигнала от времето за десорбция при гама-спектрометрични измервания на поликарбонатни пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$ , облъчени за 48 часа при температура  $20^\circ\text{C}$ . В логаритмичен мащаб са дадени скоростите на броене в пика на пълно поглъщане на линията на  $^{214}\text{Pb}$  с енергия  $352 \text{ keV}$  и неопределеността им ( $1 \sigma$ ). Правата, получена по метода на най-малките квадрати определя ефективния период.

подход. Прието бе, че измерванията се провеждат между 4-тия и 30-тия час след края на облъчването и че в този интервал сигналът спада експоненциално. Тогава сигналът, получен в момент  $t$  след края на облъчването може да се коригира по следния начин:

$$c_{\text{net}}(T_{\text{desorp}} = 0) = c_{\text{net}}(T_{\text{desorp}} = t) \cdot e^{\frac{t \cdot \ln 2}{T_{1/2\text{eff}}}}, \quad (\text{IV.1})$$

където  $T_{1/2\text{eff}}$  е времето, за което сигналът спада на половина (ефективен период). Експериментално този период може да се определи от ъгловия коефициент на правата, описваща спадането на сигнала в полулогаритмичен мащаб. Това е демонстрирано на Фиг.IV.4 за горната зависимост, получена чрез гама-спектрометрични измервания. Полученият ефективен период, както и ефективният период, определен чрез общо-бета броене за същия интервал са дадени в Таблица IV.1. Вижда се, че стойностите на ефективния период, получени по двата метода съвпадат, т.е. сигналът следва една и съща зависимост<sup>1</sup>. Оцененият среден ефективен период за интервала от 4-тия до 30-тия час е:  $T_{1/2\text{eff}} = 32.9 \pm 0.9$  часа.

Горната стойност може да се прилага само за пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$ . Както е показано в литература [120], прилагането на същия феноменологичен подход за пластинки с различна дебелина води до различни стойности на  $T_{1/2\text{eff}}$ . Това се дължи на различния профил на активността в пластинките с различна дебелина. Другото ограничение за прилагане на горната корекция, е че измерванията трябва да са проведени в интервала между 4-тия и 30-тия час след края на облъчването. Това не е строго ограничение, тъй като по принцип е препоръчително измерванията на облъчените поликарбонатни

<sup>1</sup>Този извод е валиден за конкретните образци, облъчени при конкретните условия. В общия случай ефективността на измерване при общото бета-броене може да се променя с времето и по тази причина зависимостта на сигнала да е различна от тази при гама-спектрометричните измервания. Този проблем е изследван детайлно в литература [119]. Там е показано, че за пластинки с дебелина  $250 \mu\text{m}$ , облъчени за 48 часа, ефективността при бета-броенето се запазва постоянна по време на десорбцията.

Метод на измерване	$T_{1/2\text{eff}}, \text{ h}$
Общо бета-измерване	$32.5 \pm 1.1$
Гама-спектрометрия - 295 keV	$32.7 \pm 2.0$
Гама-спектрометрия - 352 keV	$33.5 \pm 1.6$

Таблица IV.1: Време, за което в интервала 4-30 час след облъчването сигналът от ДПР в 300  $\mu\text{m}$  поликарбонатни пластинки намалява наполовина. Намаляването се дължи на десорбцията и радиоактивното разпадане на абсорбирания по време на облъчването  $^{222}\text{Rn}$ .

образци да се провеждат възможно най-бързо, за да се минимизират загубите на активност. Наскоро бе предложено, до измерването образците да бъдат съхранявани в течен азот, което спира десорбцията на радона [119].

## IV.1.2 Калибриране

След като за използваните поликарбонатни пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$  бяха установени оптималното време на облъчване и коригиращия коефициент за десорбция, бе проведено калибриране. Поликарбонатни пластинки бяха облъчени във водни проби с известна обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  за 48 часа при температура  $20 \pm 2^\circ\text{C}$  и след облъчването бяха измерени чрез общо бета-броене и гама-спектрометрия. Целта на калибрирането е за всеки от двата използвани метода на измерване да се оценят калибровъчните коефициенти  $CF^w$ :

$$CF^w = \frac{c_{\text{net}}(T_{\text{desorp}} = 0)}{A_V^w}, \quad (\text{IV.2})$$

където  $c_{\text{net}}(T_{\text{desorp}} = 0)$  е получения нетен сигнал, приведен към момента на прекратяване на облъчването, а  $A_V^w$  е началната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водната проба.

### IV.1.2.1 Облъчване на поликарбонатите

За облъчването бяха подготвени 7 водни проби с различни обемни активности на  $^{222}\text{Rn}$ , получени чрез смесване на минерална и дестилирана вода в известни масови съотношения. Минералната вода бе от чешма в с. Момин проход с обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$   $A_V^{\text{mineral}} = 1595 \text{ Bq.l}^{-1} \pm 15 \%$ . Активността и бе оценена чрез гама-спектрометричен анализ с детектор от свръхчист германий (с относителна ефективност 24,9 % и разделителна способност 1,9 keV за гама-линията на  $^{60}\text{Co}$  с енергия 1332,5 keV). Геометрията на измерването бе „Маринели“, 1000  $\text{cm}^3$ . Анализът за съдържание на  $^{222}\text{Rn}$  бе проведен по гама-линиите на неговият краткоживеещ продукт на разпадане  $^{214}\text{Pb}$  с енергии 295 keV и 352 keV [121]. В затворена система радиоактивното равновесие между радона и краткоживеещите му

продукти настъпва след около три часа. Счита се, че в измерваната водна проба това равновесие е налице. В оценената относителна неопределеност е включена компонента, отчитаща възможни загуби на ДПР при преливане на водата в съда за измерване, които могат да доведат до нарушаване на равновесието. Освен това, чрез гама-спектрометричен анализ бе оценена обемната активност на  $^{226}\text{Ra}$  в минералната вода от същия извор. Водата бе прекоцентрирана чрез бавно изпаряване (до около 20 пъти по-малък обем). Анализът бе проведен по гама-линията на  $^{226}\text{Ra}$  с енергия 186 keV и обемната активност на радия в неконцентрираната вода бе оценена на  $0.7 \text{ Bq.l}^{-1} \pm 6 \%$ . Тъй като обемната активност на  $^{226}\text{Ra}$  във водата бе много по-малка от тази на  $^{222}\text{Rn}$ , тя бе пренебрегната.

Облъчването бе проведено в пластмасови двулитрови бутилки от „Кока-кола“. В седем бутилки бе създадена различна обемна активност на радон във водата, чрез смесване на минералната вода с дестилирана в различни пропорции. Във всяка бутилка преди наливането на водата бяха поставени 7 300-микронни поликарбонатни детектора, всеки с площ  $8.75 \text{ cm}^2$ . След това в различните бутилки бе налята дестилирана вода с различна маса. Една група детектори бяха поставени в бутилка пълна с дестилирана вода за оценка на фоновия сигнал. Директно от чешмата в с. Момин проход бутилките бяха допълнени с минерална вода така, че в тях да остава минимално количество въздух. Наливането на минералната вода бе направено с ламинарен поток, за да се избегне дееманиране на радона от водата.

Началната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  във всяка бутилка бе определена на база на измервания на масите на дестилираната вода  $m_{\text{dist}}$  и на цялото количество вода  $m_{\text{tot}}$ , като:

$$A_V^w = A_V^{\text{mineral}} \frac{m_{\text{tot}} - m_{\text{dist}}}{m_{\text{tot}}}. \quad (\text{IV.3})$$

Чрез гама-спектрометрични измервания на бутилките в началото и в края на облъчването бе проверено, че те са херметични по отношение на радона, т.е. че активността в тях спада според закона за радиоактивното разпадане на  $^{222}\text{Rn}$ .

#### IV.1.2.2 Измерване на поликарбонатите

Измерванията на облъчените поликарбонатни пластинки започнаха 4 часа след края на облъчването, за да се изключи приноса на полепналите по повърхността ДПР. От всяка бутилка един детектор бе използван за общо бета-броене, а останалите шест за гама-спектрометрични измервания.

Бета-броенето бе проведено с нискофонова установка за измерване на обща бета-



активност - УМФ-1500. Установката се състои от камбановиден Гайгер-Мюлеров брояч, виждащ измервания образец под тъгъл близък до  $2\pi$  и пасивна и активна защита. При всички измервания е спазвана една и съща геометрия - пластинките са поставяни на разстояние 7 mm от прозорчето на брояча (средна позиция). Продължителността на измерванията беше между 10 и 30 минути, подбрана така, че да се получи приблизително една и съща статистика на броене. Фоновата скорост на броене  $c_{bg}$  бе определена чрез измерване без проба с продължителност 20 минути. Сигналът от детектора, облъчен в дестилирана вода, не надхвърхи критичното ниво (виж Таблица IV.3). При всеки от останалите измерени детектори скоростта на броене надвишаваше критичното ниво. Чистата скорост на броене на  $j$ -тия детектор  $c_{net}^{jk}$  към момента на измерването  $t_k$  бе определена по следния начин:

$$c_{net}^{jk} = c_{gross}^{jk} - c_{bg}, \quad (IV.4)$$

където  $c_{gross}^{jk}$  е пълната скорост на броене, определена при измерването. Относителната неопределеност на  $c_{net}^{jk}$  е оценена като:

$$\delta_{c_{net}^{jk}} = \frac{1}{c_{gross}^{jk} - c_{bg}} \sqrt{\frac{c_{gross}^{jk}}{t} + \frac{c_{bg}}{t_{bg}}}, \quad (IV.5)$$

където  $t$  е продължителността на измерването на детектора, а  $t_{bg}$  на фона.

Гама-спектрометричните измервания бяха проведени с гореописания детектор от свръх чист германий. Геометрията на измерването бе следната - купчинка от 6 детектора, облъчени в една и съща бутилка, бяха поставени върху капачката на детектора. Анализът бе проведен на базата на лините на  $^{214}\text{Pb}$  с енергии 295 keV и 352 keV. Продължителността на измерванията беше между 15 и 60 минути, подбрана така, че да се получи приблизително една и съща статистика на броене. Фоновата скорост на броене бе оценена на базата на предварително направено измерване без проба с продължителност 200000 секунди. Сигналът от детекторите, облъчени в дестилирана вода, не надхвърхи критичното ниво (виж Таблица IV.3). При всяко от останалите измервания скоростта на броене надвишаваше критичното ниво. Чистата скорост на броене на  $j$ -тия детектор  $c_{net}^{jk}$  към момента на измерването  $t_k$  бе определена по следния начин:

$$c_{net}^{jk}(E_i) = c_{gross}^{jk}(E_i) - c_{bg}(E_i), \quad (IV.6)$$

където  $c_{gross}^{jk}(E_i)$  е скоростта на броене в чистата площ на пика на пълно поглъщане с енергия ( $E_i$ ) от спектъра на пробата и  $c_{bg}(E_i)$  е скоростта на броене в чистата площ на

съответния пик от спектъра на фона. Относителната неопределеност на  $c_{\text{net}}^{jk}$  е оценена като:

$$\delta_{c_{\text{net}}^{jk}} = \frac{\sigma_{c_{\text{net}}^{jk}}}{c_{\text{gross}}^{jk}(E_i) - c_{\text{bg}}(E_i)} = \frac{\sqrt{\sigma_{c_{\text{gross}}^{jk}(E_i)}^2 + \sigma_{c_{\text{bg}}(E_i)}^2}}{c_{\text{gross}}^{jk}(E_i) - c_{\text{bg}}(E_i)}, \quad (\text{IV.7})$$

където абсолютните неопределености на  $c_{\text{gross}}^{jk}(E_i)$  и  $c_{\text{bg}}(E_i)$ ,  $\sigma_{c_{\text{gross}}^{jk}(E_i)}$  и  $\sigma_{c_{\text{bg}}(E_i)}$  са оценени софтуера, използван за визуализиране и анализ на спектрите.

Тъй като продължителността на всички измервания е много по-малка от оценения ефективен период на десорбция, може да се приеме, че скоростта на броене остава постоянна по време на измерването. Определената скорост на броене се приписва на момента от време в средата на интервала, през който се провежда измерването. Спрямо този момент се прилага и корекцията за десорбция между края на облъчването и измерването и се определя скоростта на броене на  $j$ -тия детектор, приведена към начален момент  $c_{\text{net}}^j(T_{\text{desorp}} = 0)$ , като се използва уравнение (IV.1). Относителната неопределеност на  $c_{\text{net}}^j(T_{\text{desorp}} = 0)$  се оценява като:

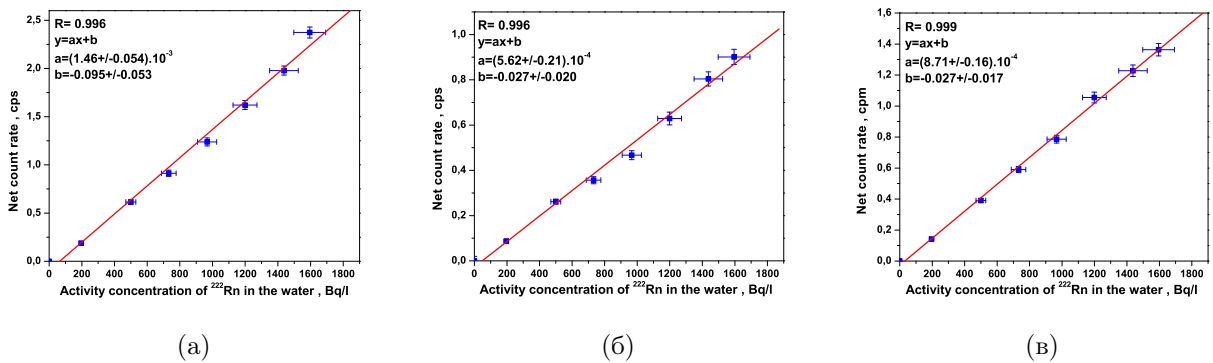
$$\delta_{c_{\text{net}}^j(T_{\text{desorp}}=0)} = \sqrt{\delta_{c_{\text{net}}^{jk}}^2 + \left(\frac{t_k \cdot \ln 2}{T_{1/2\text{eff}}}\right)^2 \delta_{T_{1/2\text{eff}}}^2}, \quad (\text{IV.8})$$

където  $\delta_{T_{1/2\text{eff}}}$  е относителната неопределеност на ефективния период. Както се вижда от горното уравнение, когато измерването е проведено няколко часа след края на облъчването (т.е. отношението  $\frac{t_k}{T_{1/2\text{eff}}}$  е малко), неопределеността на  $T_{1/2\text{eff}}$  не влияе на неопределеността на скоростта на броене в началния момент.

### IV.1.2.3 Оценка на калибровъчните коефициенти и минималната детектерурема обемна активност

На Фиг.IV.5а е представена зависимостта между скоростите на броене в началния момент, определени чрез общо бета-броене и началната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водата, в която е бил облъчен всеки детектор. На Фиг.IV.5б и Фиг.IV.5в са представени същите зависимости за случая на гама-спектрометрични измервания - съответно при използване на линията с енергия 295 keV и на линията с енергия 352 keV. И в трите случая се наблюдава много добра корелация. Това показва, че абсорбцията на  $^{222}\text{Rn}$  в поликарбонати като Makrofol, действително може да се използва за измервания на радон във води.

Добрите корелации позволяват да се въведат калибровъчни коефициенти (дефинирани с уравнение IV.2). Стойностите на калибровъчните коефициенти, заедно с техните неопределености са дадени в Таблица IV.2.



Фигура IV.5: Зависимост на между скоростите на броене в началния момент при измерване на поликарбонатни пластинки от началната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водата, в която са били облъчени. Показани са правите (получени по метода на най-малките квадрати), описващи зависимостта за всеки от случаите и са дадени коефициентите на корелация R. Ъгловите коефициенти на правите имат смисъл на калибровъчни коефициенти. При измерване чрез: а) общо бета-броене; б) гама-спектрометричен анализ на линията на  $^{214}\text{Pb}$  с енергия 295 keV; в) гама-спектрометричен анализ на линията на  $^{214}\text{Pb}$  с енергия 352 keV.

Метод на измерване	$CF^w$ , $\text{cps} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{l}$
Общо бета-измерване	$(1.46 \pm 0.23) \times 10^{-3}$
Гама-спектрометрия - 295 keV	$(5.62 \pm 0.87) \times 10^{-4}$
Гама-спектрометрия - 352 keV	$(8.7 \pm 1.3) \times 10^{-4}$

Таблица IV.2: Калибровъчни коефициенти, получени за поликарбонатни пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$ , облъчени във водни проби за 48 часа при  $T = 20^\circ\text{C}$  и измерени при описаните в текста геометрии. Неопределеностите включват неопределеността на съответния ъглов коефициент (Фиг.IV.5) и на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водата.

На база на оценените калибровъчни коефициенти за двата метода на измерване са оценени критичното ниво  $L_c$  и минималната детектуема обемна активност ( $MDAC^2$ ) на  $^{222}\text{Rn}$  във води - представени в Таблица IV.3. В Приложение Б е представен подхода за оценяване на  $L_c$  и  $MDAC$  и са изведени изразите, използвани за оценката им. Важно е да се отбележи, че дадените в таблицата стойности за  $MDAC$  са предварителни оценки за минималната обемна активност, която би довела до сигнал, статистически различим от фоновия.

Получените калибровъчни коефициенти, както и оценените стойности за  $MDAC$ , са валидни само тогава, когато при измерването се спазват същите условия като при проведеното калибриране, т.е. детекторите са пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$ , облъчването продължава 48 часа, обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водата спада според закона за радиоактивно разпадане, температурата е  $T = 20^\circ\text{C}$ , измерването се провежда в интервала от 4 до 30 часа след облъчването и е с продължителност до 1-2 часа. В случай, че условията

<sup>2</sup>От английски Minimal Detectable Activity Concentration

Метод на измерване	$L_c$ , cps	$MDAC$ , $Bq.l^{-1}$
Общо бета-измерване	$8.36 \times 10^{-3}$	11.5
Гама-спектрометрия - 295 keV	$6.56 \times 10^{-3}$	23.4
Гама-спектрометрия - 352 keV	$5.16 \times 10^{-4}$	11.9

Таблица IV.3: Критично ниво и  $MDAC$ , получени за поликарбонатни пластинки с дебелина  $L = 300 \mu m$ , облъчени във водни проби за 48 часа при  $T = 20^\circ C$  и измерени при описаните в текста геометрии. Оценките са направени при време за измерване на пластинките 1 h и на фона 10 h при общи бета-измервания и 100 h при гама-спектрометрия. Нивото на достоверност е 95%.

се различават от гореописаните, калибровъчният коефициент може да се коригира, с помощта на теоретичния модел, описващ сорбцията и десорбцията на  $^{222}Rn$  в поликарбонати. Принципът на корекцията е показан в Приложение А.2.

### IV.1.3 Резултати от пилотни измервания

Направени бяха пилотни измервания на три водни проби (от кладенец в с. Горни Богров, от чешма в с. Горни Богров и от чешма в гр. Бухово). За 48 часа в пробите бяха облъчени поликарбонатни пластинки с дебелина  $300 \mu m$  при температура от  $T = 20^\circ C$ . Пластинките бяха измерени чрез общо бета-броене с гореописаната установка УМФ-1500. Измервания, с продължителност по-малка от 30 минути, бяха проведени около 4 часа след края на облъчването и сигналът бе коригиран към началния момент. За оценка на обемната активност бе използван калибровъчният коефициент, даден в Таблица IV.2. Резултатите са представени в Таблица IV.4, заедно с резултати от паралелни гама-спектрометрични измервания. Вижда се, че резултатите, получени по двата метода съвпадат в рамките на неопределеностите.

Номер	Обемна активност на $^{222}Rn$ , $Bq.l^{-1}$	
	Чрез облъчване на поликарбонати	Чрез гама-спектрометрия на водата
1	$218 \pm 21$	$206 \pm 31$
2	$153 \pm 17$	$192 \pm 29$
3	$126 \pm 40$	$130 \pm 40$

Таблица IV.4: Сравнение на резултати от измервания на обемната активност на  $^{222}Rn$  във вода, получени чрез предложения поликарбонатен метод и чрез гама-спектрометрия на водата. Всички проби са от реални водоизточници в района на софийското поле.

## IV.2 Метод за измерване на $^{222}\text{Rn}$ и $^{226}\text{Ra}$ във води чрез абсорбция на радон в поликарбонати и ецване на трекове от алфа-частици

По същността си разработеният метод за измервания на  $^{222}\text{Rn}$  във вода, публикуван в литература [117], не се различава от компакт-дисковия метод - и при двата се проявяват трековете на определена дълбочина под повърхността на облъчени поликарбонатни пластинки. Плътноста на трековете е пропорционална на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водата, интегрирана по времето на облъчване. Коефициентът на пропорционалност наричаме калибровъчен коефициент  $CF^{wtr}$ . Както и при облъчванията във въздух, калибровъчният коефициент зависи от дълбочината, на която се проявяват трековете  $d$  и от температурата на облъчване  $T$  и се дефинира, като:

$$CF^{wtr}(T, d) = \frac{n_{\text{net}}(T, d)}{I_V}, \quad (\text{IV.9})$$

където  $n_{\text{net}}(T, d)$  е чистата плътност на трековете на съответната дълбочина, а  $I_V$  е интегрираната по времето на облъчване обемна активност на радона във водата.

За разлика от случая на облъчване във въздух бе разгледана възможността при облъчване във вода да се използва плътността на трековете на дълбочини в интервала  $0 \div 70 \mu\text{m}$ . Целта бе да се потърси оптимална дълбочина  $d_{\text{opt}}$ , на която стойността на  $CF^{wtr}$  е по-голяма от тази при  $80 \mu\text{m}$ , а приносът на ДПР, намиращи се във водата или полепнали по повърхността е пренебрежим.

Тъй като досега плътността на трековете в интервала  $0 \div 70 \mu\text{m}$  не бе изследвана нито експериментално, нито теоретично, бе разработен теоретичен модел, описващ дълбочинната зависимост на плътността на трековете при облъчване във вода [117]. Моделът е базиран на модел, разработен за облъчване във въздух [75], като е разширен за дълбочини от 0 до  $70 \mu\text{m}$ . Освен това, в рамките на модела са получени изрази, с помощта на които може да се оцени приноса на двете „паразитни“ компоненти на сигнала (т.е. на трековете формирани от ДПР, намиращи се във водата и полепнали по повърхността на диска). Разработеният модел е представен по-долу.

## IV.2.1 Модел на дълбочинното разпределение на плътността на трековете в поликарбонатни детектори, облъчени във вода

Когато  $^{222}\text{Rn}$  е директно разтворен от водата, а не е генериран от разтворен в нея  $^{226}\text{Ra}$ , неговата активност е типично много по-голяма от тази на останалите естествени нуклиди, които са разтворени от водата. Затова в случая на измервания на радон се разглеждат три алфа-излъчващи нуклида, на които се дължат трековете, формирани в детекторите -  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$ . В понататъшните означения индексът  $i$  заема стойности 1, 2 и 3, съответстващи на нуклидите  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$ .

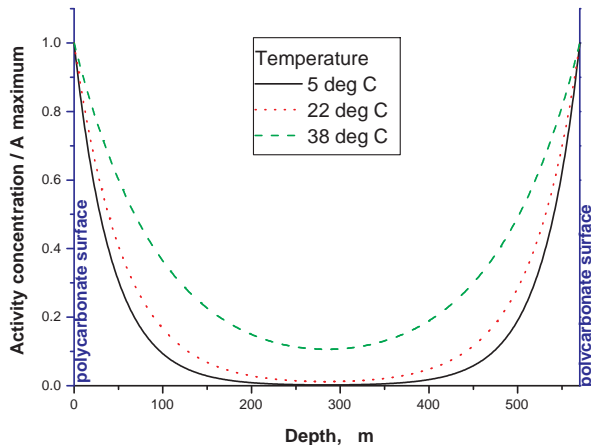
Според местоположението си, източниците на алфа-частици са разделени в следните три групи:

- Вътре в детектора -  $^{222}\text{Rn}$  и  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$ , получени от абсорбирания радон. Както бе коментирано в част II.3 в поликарбоната няма други алфа-излъчващи нуклиди. Съответната компонента в плътността на трековете е означена с  $n$ . Тя представлява „полезния“ сигнал, тъй като е пропорционална на интегрираната обемна активност на радона във водата (аналогично на облъчванията във въздух). В Приложение А.3 е показано, че при прилагането на трековия метод, може да се приеме, че разпределението на радона и ДПР в поликарбонатните пластинки е стационарно и обемната им активност се описва с уравнението:

$$A_V^i(x) = A_V(x) = \frac{K_{\text{water}} A_{\text{out}}}{\cosh\left(\frac{L}{2L_D}\right)} \cosh\left(\frac{x - \frac{L}{2}}{L_D}\right). \quad (\text{IV.10})$$

За случая на поликарбонатни пластинки с дебелина  $570 \mu\text{m}$ , профилът на разпределението на активността е илюстриран на Фиг.IV.6.

- Във водата -  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$ . Последните два нуклида формират „паразитен“ сигнал, тъй като е възможно равновесието между тях и радона във водата да е нарушено (например, поради отлагане на ДПР по стените на съда). Разпределението на горните нуклиди във водата около поликарбоната, който е с типични размери няколко сантиметра, е хомогенно. Съответната компонента в плътността на трековете е означена с  $n_{\text{outside}}$ .
- На повърхността - отложени  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$ . Разпределението на отложените нуклиди по повърхността на детектора се приема за хомогенно (следствие от разпределението им във водата). Тази компонента приемаме за „паразитна“, тъй като не ни е известно



Фигура IV.6: Профил на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  и ДПР в поликарбонатни пластинки с дебелина  $570\ \mu\text{m}$  (парче от DVD) при стационарни условия. Показани са профили за различни температури на облъчване, т.е. различни  $L_D$ . Обемната активност е разделена на максималната обемна активност в поликарбоната, т.е. тази на границата. При различните температури разтворимостта на радона от водата в поликарбоната  $K_{\text{water}}$  е различна и активността на границата е различна при една и съща външна активност.

каква е зависимостта между активността на отложените ДПР и обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водата. Съответната компонента в плътността на трековете е означена с  $n_{\text{plate-out}}$ .

За да се моделира плътността на трековете, формирани от всяка от трите компоненти, е необходимо да се познават регистрационните характеристики на поликарбонатите за алфа-частици. Регистрационните характеристики на трековите детектори се описват от тяхната енергетично-ъглова чувствителност.

#### IV.2.1.1 Моделиране на енергетично-ъгловата чувствителност на поликарбонатните детектори.

Енергетично-ъгловата чувствителност на твърдотелен треков детектор описва вероятността алфа-частица с енергия  $E$  и ъгъл на падане  $\theta$  да формира трек, който ще бъде проявен при конкретния процес на ецване. Ъгълът на падане се дефинира като ъгъла между траекторията на частицата и нормалата към повърхността, която ще бъде ецвана. Енергетично-ъгловата чувствителност на детектори Makrofol при електрохимично ецване е изследвана в литература [72]. Условиата на ецване, за които е направено изследването, са много близки до тези използвани при експериментите, проведени в настоящата работа (описани в част III.1). Поради сложната форма на източника в този модел (виж уравнение IV.10 и Фиг. IV.6), тук е използвано приближение на функцията, описваща енергетично-ъгловата чувствителност, базирано на резултатите представени в литература [72]. Прието е, че една алфа-частица се регистрира (с вероятност 100 %) тогава и само тогава, когато едновременно удовлетворява следните две условия:

$$0.3\ \text{MeV} \leq E \leq 1.7\ \text{MeV} \tag{IV.11}$$

Нуклид	Поликарбонат			Вода			Въздух		
	<sup>222</sup> Rn	<sup>218</sup> Po	<sup>214</sup> Po	<sup>222</sup> Rn	<sup>218</sup> Po	<sup>214</sup> Po	<sup>222</sup> Rn	<sup>218</sup> Po	<sup>214</sup> Po
Пробег, $\mu\text{m}$	37.5	42.9	63.7	43.1	49.4	73.3	$4.16 \times 10^4$	$4.78 \times 10^4$	$7.08 \times 10^4$
$R_{\min}$ , $\mu\text{m}$	29.8	35.2	56.0	33.9	40.2	64.1	$3.29 \times 10^4$	$3.95 \times 10^4$	$6.21 \times 10^4$
$R_{\max}$ , $\mu\text{m}$	35.7	41.1	61.9	40.6	46.9	70.8	$3.93 \times 10^4$	$4.55 \times 10^4$	$6.85 \times 10^4$

Таблица IV.5: Пробези на алфа-частиците на радона и ДПР в поликарбонат, вода и въздух. Минимално и максимално разстояние, което съответната алфа-частица трябва да измине в дадената среда преди да бъде регистрирана в поликарбоната. Стойностите са проектирани пробези, пресметнати от програмата ASTAR [69].

$$\theta \leq \theta_c = 50^\circ \quad (\text{IV.12})$$

Условието за енергията на частицата (уравнение IV.11) води до условие за минималното ( $R_{\min}$ ) и максималното ( $R_{\max}$ ) разстояние, което алфа-частица, излъчена от определен нуклид (т.е. с определена енергия) трябва да измине, преди да е възможно да формира трек в поликарбоната. За алфа-частица, чийто пробег в дадения материал е  $R$ , минималното и максималното разстояние могат да се определят като:

$$R_{\min} = R - R_{1.7}, \quad (\text{IV.13})$$

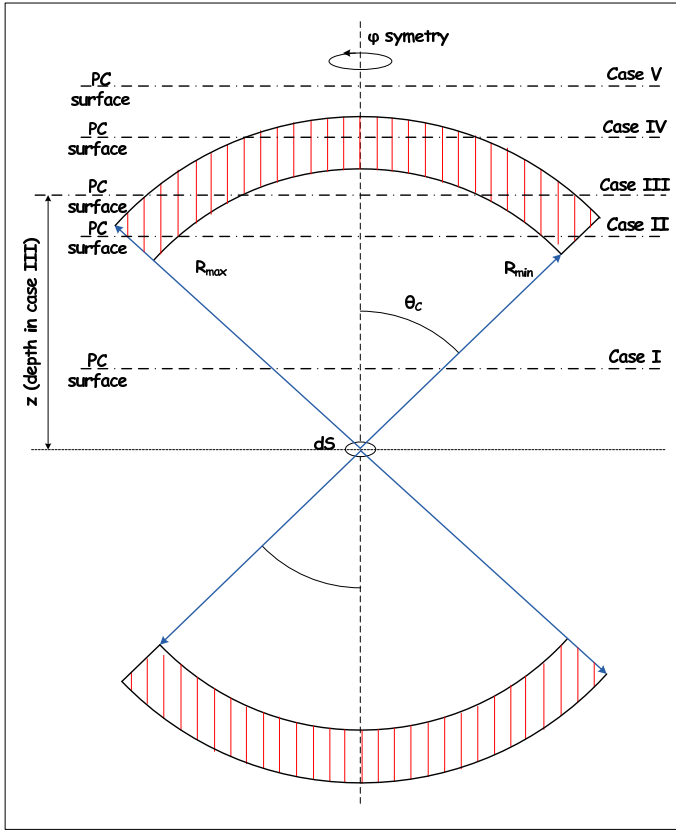
$$R_{\max} = R - R_{0.3}, \quad (\text{IV.14})$$

където  $R_{0.3}$  и  $R_{1.7}$  са съответно пробезите на алфа-частици с енергия 0.3 MeV и 1.7 MeV в дадения материал.

За алфа-частиците излъчени от <sup>222</sup>Rn, <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Po стойностите на минималното и максималното разстояние за поликарбонат са дадени в Таблица IV.5. При условие, че алфа-частицата е излъчена извън поликарбоната и формира трек на повърхността му, то минималното и максималното разстояние, ще се определят за външната среда. Затова в Таблица IV.5 са показани и стойностите на минималното и максималното разстояние, което алфа-частиците на горните три нуклида трябва да изминат във вода, преди да е възможно да формират трек в поликарбоната. За сравнение са дадени и стойностите на минималното и максималното разстояние във въздух.

Ако се разгледа малък повърхнинен елемент  $\Delta s$ , успореден на повърхността на детектора, тогава условията зададени от уравнения (IV.12 - IV.14) определят обемите  $V^i$ , от които алфа-частици на  $i$ -тия нуклид могат да формират трекове върху  $\Delta s$ . Ако обемната активност в точките от  $V^i$ , претеглена с вероятността алфа-частица от съответната точка да се излъчи в посока към  $\Delta s$ , се интегрира по целия  $V^i$ , ще се получи броят трекове, формиран за единица време върху  $\Delta s$ . От него може да се определи плътността на трековете на дълбочината, на която е избрана  $\Delta s$ .





Фигура IV.7: Илюстрация на различните обеми по които се интегрира активността при различна дълбочина  $z$ , на която се намира повърхността  $\Delta s$ , върху която определяме формираните трекове. Шрихованата област е областта, от която алфа-частици от дадения нуклид могат да формират трекове върху  $\Delta s$ , ако тя попада в обема на поликарбоната. Когато част от тази област попада извън поликарбоната, обема на частта над повърхността се изключва. Според формата на областта, попадаща вътре в детектора, се разграничават пет случая. Във всеки от случаите има сферична симетрия, тъй като  $\Delta s$  е успоредна на повърхността.

#### IV.2.1.2 Плътност на трековете, формирана от източници вътре в детектора

Когато се разглеждат алфа-частици, излъчени в поликарбоната, формата на  $V^i$  зависи и от разстоянието между  $\Delta s$  и повърхността на поликарбоната (Фиг.IV.7). Броят алфа-частици, излъчени от  $i$ -тия нуклид в малък обемен елемент  $dV$ , съдържащ се във  $V^i$ , които достигат  $\Delta s$  за единица време е:

$$dN^i = \frac{\Delta s \cos \theta}{4\pi r^2} A_V^i dV, \quad (\text{IV.15})$$

където  $r$  е разстоянието между  $dV$  и  $\Delta s$ ,  $\theta$  е ъгълът между нормалата на  $\Delta s$  и радиус вектора към  $dV$  и  $A_V^i$  е обемната активност на този нуклид в  $dV$ . Пълният брой трекове върху  $\Delta s$  от  $i$ -тия нуклид за време на облъчване  $T_{\text{exp}}$  се дава от:

$$N^i = \int_0^{T_{\text{exp}}} \int_{V^i} \frac{\Delta s \cos \theta}{4\pi r^2} A_V^i dV. \quad (\text{IV.16})$$

Заместването на израза за обемната активност А.26 в горното уравнение води до:

$$N^i = \frac{K I_{\text{out}} \Delta s}{\cosh\left(\frac{L}{2L_D}\right)} \int_{V^i} \frac{\cos \theta}{4\pi r^2} \cosh\left(\frac{x - \frac{L}{2}}{L_D}\right) dV, \quad (\text{IV.17})$$

където  $I_{\text{out}}$  е интегрираната по времето обемна активност на радона във външната среда ( $I_{\text{out}} = \int_0^{T_{\text{exp}}} A_{\text{out}} dt$ ). Като се има предвид, че в сферични координати  $dV = 2\pi r^2 \sin\theta dr d\theta$  и че по дефиниция плътността на трековете върху  $\Delta s$ , дължаща се на  $i$ -тия нуклид е равна на  $N^i$  разделено на  $\Delta s$ , то:

$$n^i = \frac{K I_{\text{out}}}{2 \cosh\left(\frac{L}{2L_D}\right)} \int_{V^i} \cos\theta \sin\theta \cosh\left(\frac{x - \frac{L}{2}}{L_D}\right) d\theta dr, \quad (\text{IV.18})$$

като връзката между  $x$  и  $r$  се дава с:  $x = z - r \cos\theta$ , където  $z$  е дълбочината, на която се намира  $\Delta s$  и съответно, на която определяме трековете. Интегралът по обема има различно решение за всеки от петте случая показани на Фиг.IV.7. Решенията могат лесно да се получат, като се използват следните два помощни интеграла:

$$J_{\text{arc}} = \int_0^{\theta_{\text{max}}} \int_{r_{\text{min}}}^{r_{\text{max}}} e^{\frac{r \cos\theta}{L_D}} dr \sin\theta \cos\theta d\theta = \frac{L_D^2}{R_{\text{max}}} \left( e^{\frac{R_{\text{max}}}{L_D}} - e^{\frac{R_{\text{max}} \cos\theta_c}{L_D}} \right) - \frac{L_D^2}{R_{\text{min}}} \left( e^{\frac{R_{\text{min}}}{L_D}} - e^{\frac{R_{\text{min}} \cos\theta_c}{L_D}} \right), \quad (\text{IV.19})$$

като обемът, по който се интегрира е илюстриран на Фиг.IV.8а.

$$J_{\text{cap}} = \int_0^{\theta_{\text{max}}} \int_{\frac{r_{\text{max}} \cos\theta_{\text{max}}}{\cos\theta}}^{r_{\text{max}}} e^{\frac{r \cos\theta}{L_D}} dr \sin\theta \cos\theta d\theta = L_D e^{\frac{r_{\text{max}} \cos\theta_{\text{max}}}{L_D}} (\cos\theta_{\text{max}} - 1) - \frac{L_D^2}{R_{\text{max}}} \left( e^{\frac{R_{\text{max}}}{L_D}} - e^{\frac{R_{\text{max}} \cos\theta_c}{L_D}} \right), \quad (\text{IV.20})$$

като обемът, по който се интегрира е илюстриран на Фиг.IV.8б. Подходът, използван за интегриране при всеки от петте случая показани на Фиг.IV.7 с помощта на интегралите  $J_{\text{arc}}$  и  $J_{\text{cap}}$  е илюстриран на Фиг.IV.9.

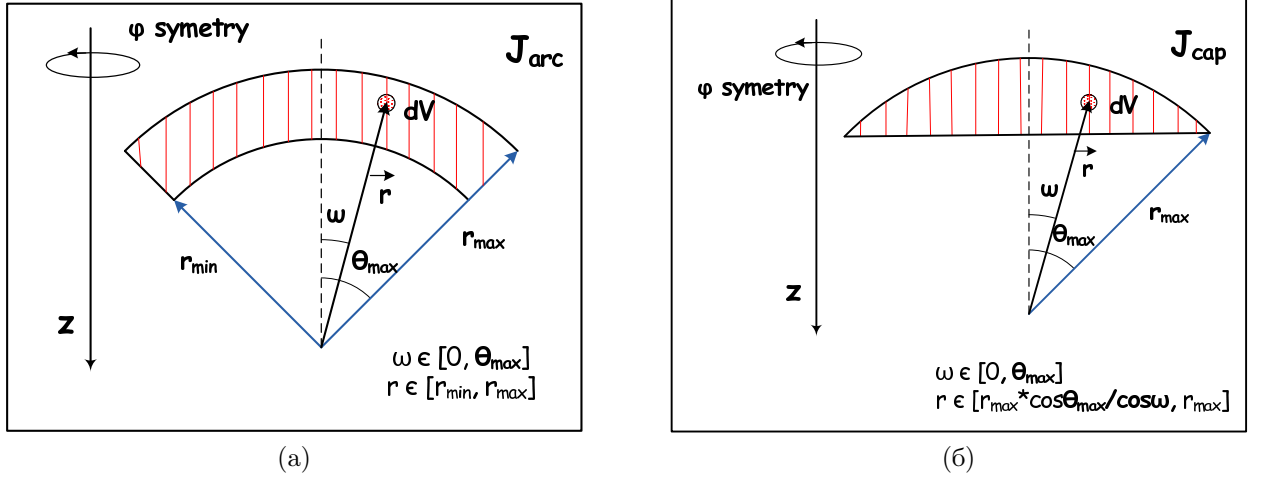
Решението за плътността на трековете на дълбочина  $z$ , дължаща се на трите нуклида може да бъде представено в обща форма:

$$n_m(z) = \sum_{i=1}^3 n_m^i(z) = \frac{K I_{\text{out}} L_D}{2 \cosh\left(\frac{L}{2L_D}\right)} \cosh\left(\frac{z - \frac{L}{2}}{L_D}\right) \sum_{i=1}^3 Q_m^i(z), \quad (\text{IV.21})$$

където  $m = I, II, III, IV, V$  и неговите стойности съответстват на случаите, показани на Фиг.IV.7. В явен вид:

$$Q_I^i = \frac{L_D}{R_2^i} \left( e^{-\frac{R_2^i}{L_D}} - e^{-\frac{R_2^i \cos\theta_c}{L_D}} \right) - \frac{L_D}{R_1^i} \left( e^{-\frac{R_1^i}{L_D}} - e^{-\frac{R_1^i \cos\theta_c}{L_D}} \right), \quad (\text{IV.22})$$

$$Q_{II}^i = Q_I^i + e^{\frac{z}{L_D}} \left( \frac{z}{R_1^i} - \cos\theta_c \right) - \frac{L_D}{R_1^i} \left( e^{\frac{z}{L_D}} - e^{\frac{R_1^i \cos\theta_c}{L_D}} \right), \quad (\text{IV.23})$$



Фигура IV.8: При интегриране на областите, илюстрирани на Фиг. IV.7, във всеки от случаите те могат да се разделят на области с някоя от тези две форми. Представени са границите на интегралите по радиуса и по азимуталния ъгъл. По полярния ъгъл е налице симетрия.

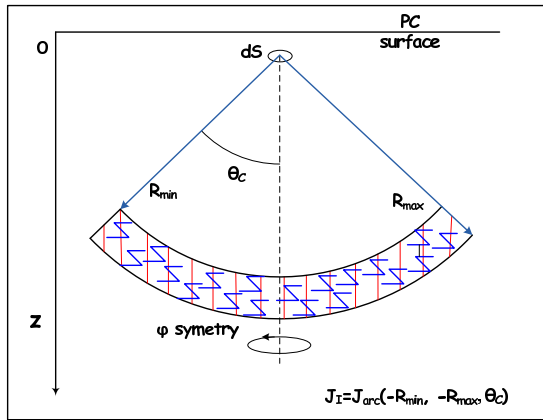
$$\begin{aligned}
 Q_{III}^i &= Q_I^i + \frac{L_D}{R_2^i} \left( e^{\frac{z}{L_D}} - e^{\frac{R_2^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) - \frac{L_D}{R_1^i} \left( e^{\frac{z}{L_D}} - e^{\frac{R_1^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) \\
 &+ e^{\frac{z}{L_D}} \left( \frac{z}{R_1^i} - \frac{z}{R_2^i} \right), \tag{IV.24}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 Q_{IV}^i &= Q_I^i + \frac{L_D}{R_2^i} \left( e^{\frac{z}{L_D}} - e^{\frac{R_2^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) - \frac{L_D}{R_1^i} \left( e^{\frac{R_1^i}{L_D}} - e^{\frac{R_1^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) \\
 &+ e^{\frac{z}{L_D}} \left( 1 - \frac{z}{R_2^i} \right), \tag{IV.25}
 \end{aligned}$$

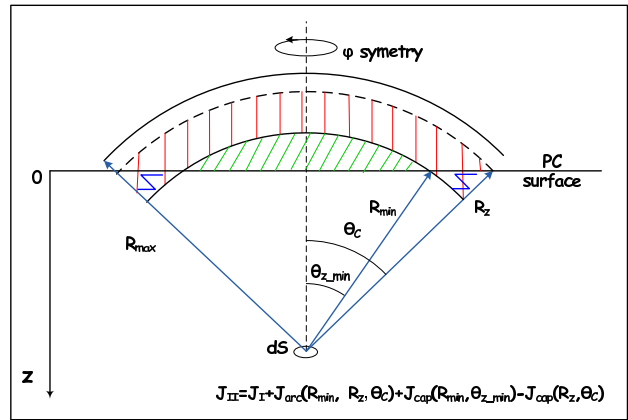
$$Q_V^i = Q_I^i + \frac{L_D}{R_2^i} \left( e^{\frac{R_2^i}{L_D}} - e^{\frac{R_2^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) - \frac{L_D}{R_1^i} \left( e^{\frac{R_1^i}{L_D}} - e^{\frac{R_1^i \cos \theta_c}{L_D}} \right). \tag{IV.26}$$

Изразът за  $m=V$  (и като част от него изразът за  $m=I$ ), който е валиден при  $z \geq 65 \mu\text{m}$ , е получен в литература [75]. Другите изрази, описващи плътността на трековете на по-малки дълбочини, са получени за целите на настоящото изследване и са представени в литература [117].

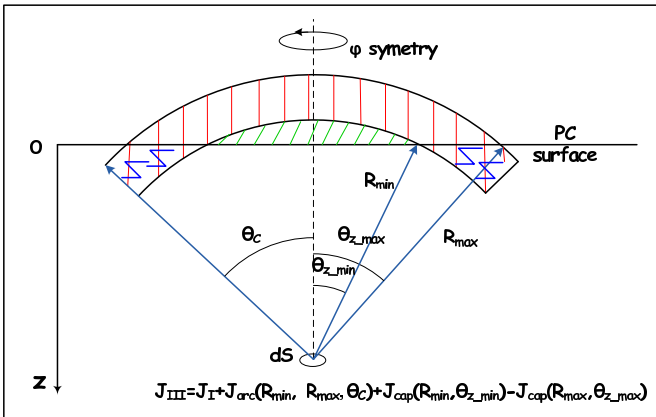
Дълбочинно разпределение на парциалната плътност на трековете, дължаща се на всеки от трите разглеждани алфа-лъчителя, е показано на Фиг.IV.10. На всяка от кривите ясно са разграничени следните зони: първоначално намаляване (при случай I, което се дължи на намаляване на активността в дълбочина), последващо нарастване (случаи



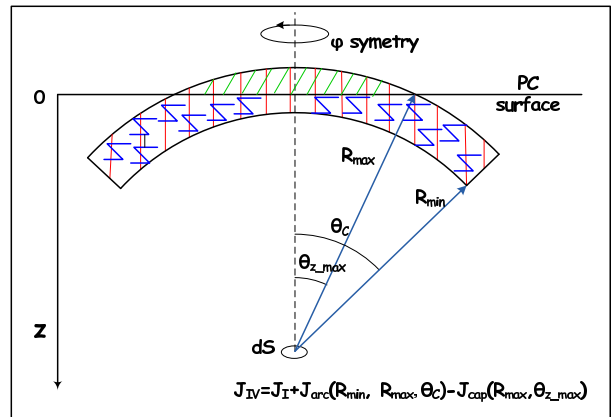
(а)



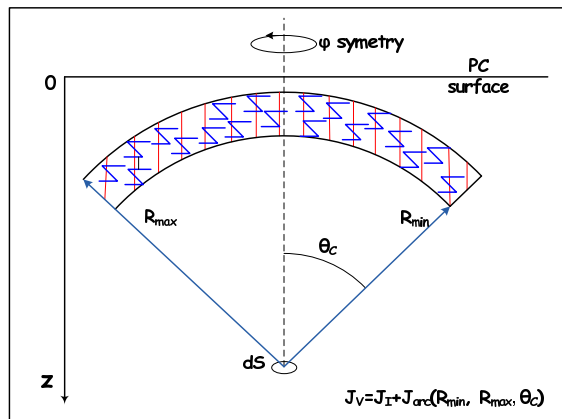
(б)



(B)

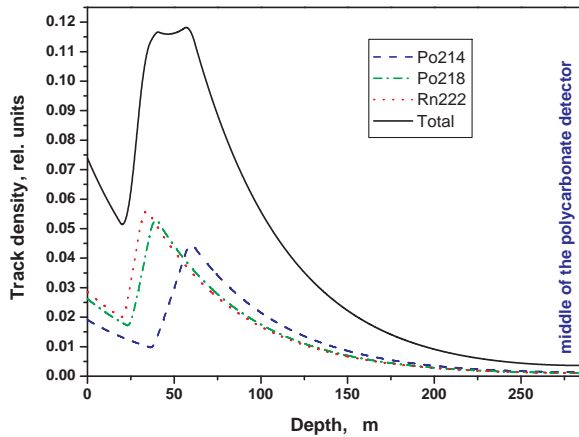


(Г)



(Д)

Фигура IV.9: Иллюстрация на разделянето на области, по които се интегрира, за всеки от случаите илюстрирани на Фиг. IV.7. Интегралът по областта е представен като сума от помощните интеграли  $J_{arc}$  и  $J_{cap}$ , даващи решението при интегриране по областите, показани на Фиг. IV.8. Случаите се реализират при: (а)  $z \leq R_{min}^i \cos \theta_c$ ; (б)  $R_{min}^i \cos \theta_c < z \leq R_{max}^i \cos \theta_c$ ; (в)  $R_{max}^i \cos \theta_c < z \leq R_{min}^i$ ; (г)  $R_{min}^i < z \leq R_{max}^i$ ; (д)  $R_{max}^i < z$ .



Фигура IV.10: Профил на плътността на трековете (относителни единици) в поликарбонатни детектори с дебелина  $L = 570 \mu\text{m}$  (например DVD), облъчени във вода при температура  $21^\circ$  (при тези условия са проведени експерименти, описани в следващата част). Представени са парциалните плътности на трековете, формирани от трите алфа-лъчители и пълната плътност на трековете. Профилът е симетричен спрямо средата на детектора.

II-IV, дължащо се на включване на нов обем от поликарбоната) и повторното намаляване (при случай V, отново дължащо се на намаляване на активността в дълбочина). Плътността на трековете се получава след събиране на трите компоненти и нейната зависимост от дълбочината също е показана на Фиг.IV.10.

### IV.2.1.3 Плътност на трековете, формирана от източници във водата

Плътността на трековете, дължаща се на източниците във външната среда  $n_{\text{outside}}$  е оценена само на повърхността на детектора. Оценка за други дълбочини не е направена аналитично, тъй като пробегът на алфа-частиците е различен в двата материала. В следващ етап тя би могла да се направи чрез Монте Карло моделиране. На този етап се приема, че  $n_{\text{outside}}$  не нараства в дълбочина. При облъчвания във вода, това допускане не би могло да доведе до голяма грешка, тъй като пробезите на алфа-частиците във вода и в поликарбонат са близки (виж Таблица IV.5). При облъчвания във въздух, обаче,  $n_{\text{outside}}$  ще достига максимум под повърхността.

Обемът  $V^i$ , от който алфа-частици на  $i$ -тия нуклид могат да формират трекове върху  $\Delta s$ , намираща се на повърхността на детектора, има същата форма, като показания на Фиг.IV.9а. Пълният брой трекове върху  $\Delta s$  от  $i$ -тия нуклид за време на облъчване  $T_{\text{exp}}$  отново се дава от уравнение (IV.16). За разлика от случая, разгледан по-горе, тук активността е хомогенно разпределена в източника. Приносът на  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$  във водата към плътността на трековете, ще е максимален, ако ДПР са в равновесие с радона във водата. Затова тук е разгледан именно този случай. Аналогично на уравнение (IV.16), броят трекове върху  $\Delta s$  от  $i$ -тия нуклид при време на облъчване  $T_{\text{exp}}$  се дава от:

$$N_{\text{outside}}^i = \int_0^{T_{\text{exp}}} \int_{V_i} \frac{\Delta s \cos \theta}{4\pi r^2} A_v dt dV = \Delta s I_{\text{out}} \int_0^{\theta_c} \int_{R^i - R'_{1.7}}^{R^i - R'_{0.3}} \cos \theta \sin \theta d\theta dR =$$

$$= \frac{\Delta s I_{\text{out}}}{2} (R'^{1.7} - R'^{0.3}) \sin^2 \theta_c, \quad (\text{IV.27})$$

$$(\text{IV.28})$$

където пробезите  $R'$  се отнасят за съответната външна среда, т.е. за водата. Горният израз показва, че плътността на трековете не зависи от конкретния нуклид (енергията на алфа-частиците на всеки от разглежданите нуклиди е по-голяма от 1.7 MeV). Максималната плътност на трековете, формирана на повърхността от  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$  (т.е. „паразитния“ сигнал), се пресмята като:

$$n_{\text{outside}}(z = 0) \sum_{i=2}^3 \frac{N^i}{\Delta s} = I_{\text{out}} (R'^{1.7} - R'^{0.3}) \sin^2 \theta_c. \quad (\text{IV.29})$$

Два пъти по-малка е плътността на трековете, формирана на повърхността от  $^{222}\text{Rn}$  във водата.

Горният израз е валиден и за детектори облъчени във въздух (стига да се облъчват открити и всички алфа-частици от въздуха да могат да достигнат до повърхността им). Като се използват пробезите на частици с енергия 0.3 MeV и 1.7 MeV във вода и във въздух, се получава, че при едни и същи външни обемни активности на радона  $n_{\text{outside}}(z = 0)$  е 950 пъти по-голямо за облъчване във въздух, отколкото във вода<sup>3</sup>.

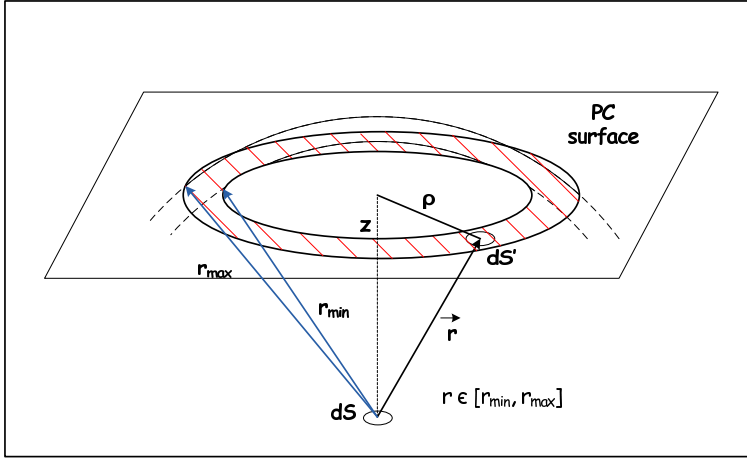
#### IV.2.1.4 Плътност на трековете, формирана от източници на повърхността на детектора

За случая, в който източникът е повърхнинен, а не обемен (полепналите по повърхността ДПР), броят алфа-частици излъчени от  $i$ -тия нуклид в малък повърхнинен елемент  $dS$ , достигащи до  $\Delta s$  за единица време е:

$$dN^i = \frac{\Delta s \cos \theta}{4\pi r^2} A_s^i dS, \quad (\text{IV.30})$$

където  $A_s^i$  е специфичната повърхностна активност на този нуклид върху  $dS$ , а останалите означения са същите като в уравнение (IV.16). Пълният брой трекове върху  $\Delta s$  от  $i$ -тия нуклид за време на облъчване  $T_{\text{exp}}$  се дава от:

<sup>3</sup>Като се има предвид, че при облъчванията във вода същата обемна активност ще доведе до по-голяма плътност на трекове  $n$ , дължаща се на радон, абсорбиран в детектора



Фигура IV.11: Област, от която алфа-частици, излъчени от повърхността могат да формират трекове на дълбочина  $z$ .

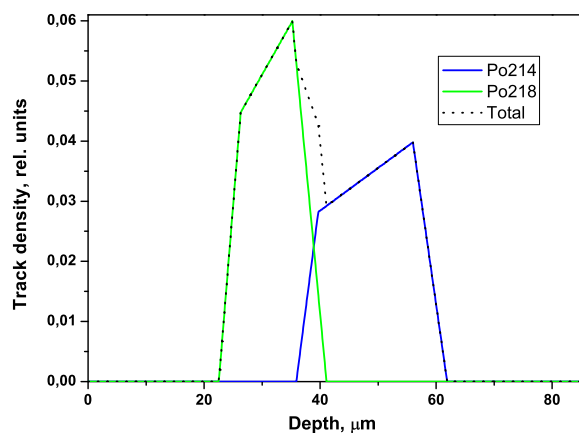
$$N^i = \int_0^{T_{\text{exp}}} \int_{S^i} \frac{\Delta s \cos \theta}{4\pi r^2} A_S^i dS, \quad (\text{IV.31})$$

където интегрирането е по площта  $S^i$ , за която са изпълнени условията (IV.12 - IV.14). На Фиг. IV.11 е представена площта  $S^i$ , която е заградена между две концентрични окръжности, центърът на които се намира в проекцията на  $\Delta s$  върху повърхността. При хомогенна специфична повърхностна активност, плътността на трековете на дълбочина  $z$ , дължаща се на  $i$ -тия нуклид, може да бъде определена като:

$$\begin{aligned} n^i(z) &= \frac{A_S^i}{4\pi} \int_0^{T_{\text{exp}}} dt \int_{\rho_1}^{\rho_2} \frac{\cos \theta}{z^2 + \rho^2} 2\pi \rho d\rho = \frac{A_S T_{\text{exp}}}{4} \int_{\rho_1}^{\rho_2} \frac{z}{(z^2 + \rho^2)^{\frac{3}{2}}} d\rho^2 = \\ &= \frac{A_S T_{\text{exp}}}{2} \left( \frac{z}{\sqrt{z^2 + \rho_1^2}} - \frac{z}{\sqrt{z^2 + \rho_2^2}} \right) = \frac{A_S T_{\text{exp}}}{2} \left( \frac{z}{r_{\min}} - \frac{z}{r_{\max}} \right), \end{aligned} \quad (\text{IV.32})$$

където означенията  $\rho$  и  $r_{\min}$  и  $r_{\max}$  са представени на Фиг. IV.11. В зависимост от дълбочината  $z$ ,  $r_{\min}$  и  $r_{\max}$  заемат различни стойности, така че да са удовлетворени условията (IV.12 - IV.14). Стойностите, които заемат  $r_{\min}$  и  $r_{\max}$  при различна дълбочина са:

- Случай I:  $z \leq R_{\min}^i \cos \theta_c \Rightarrow n^i(z) = 0$ ;
- Случай II:  $R_{\min}^i \cos \theta_c < z < R_{\max}^i \cos \theta_c \Rightarrow r_{\min} = R_{\min}^i$  и  $r_{\max} = \frac{z}{\cos \theta_c}$ ;
- Случай III:  $R_{\max}^i \cos \theta_c < z < R_{\min}^i \Rightarrow r_{\min} = R_{\min}^i$  и  $r_{\max} = R_{\max}^i$ ;
- Случай IV:  $R_{\min}^i < z \leq R_{\max}^i \Rightarrow r_{\min} = z$  и  $r_{\max} = R_{\max}^i$ ;
- Случай V:  $R_{\max}^i < z \Rightarrow n^i(z) = 0$ ;



Фигура IV.12: С плътни линии са представени профилите на парциалните плътности на трековете, формирани от <sup>218</sup>Po (отляво) и <sup>214</sup>Po (отдясно), отложени по повърхността на поликарбонатен детектор. Сумата от двата профила (пунктираната линия) описва  $n_{\text{plate-out}}$  при условие, че специфичните повърхностни активности на двата нуклида са еднакви.

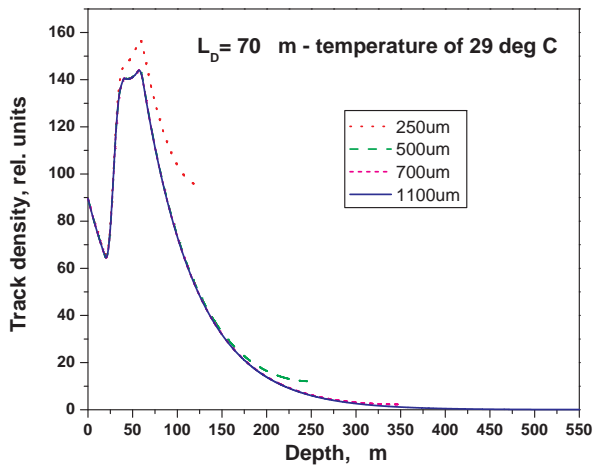
Плътността на трековете, дължаща се на ДПР, отложени по повърхността се получава след сумиране по двата изотопа:  $n_{\text{plate-out}}(z) = \sum_{i=2}^3 n^i(z)$ . Зависимостта на  $n^i$  от дълбочината е показана на Фиг. IV.12, като стойностите са в относителни единици. На този етап не е направена точна количествена оценка на приноса на ДПР, отложени по повърхността, към плътността на трековете в поликарбонатни пластинки. Експерименталните резултати от бета/гама-измервания на облъчени поликарбонатни пластинки показват, че активността на ДПР, полепнали по повърхността, е поне на порядък по-голяма при облъчвания във въздух отколкото при облъчвания във вода при еднакви външни обемни активности на радона. Затова в настоящия модел, разработен за облъчвания във вода, приносът на ДПР на повърхността не е отчетен. Той би могъл да се отчете, ако се оцени отношението на специфичната повърхностна активност  $A_S$  и на обемната активност  $A_V$  на <sup>218</sup>Po и <sup>214</sup>Po в поликарбонатни пластинки по време на облъчването им във вода.

#### IV.2.1.5 Резултати от модела

Целта на разработения модел бе да се получи профилът на плътността на трековете в дълбочина за поликарбонатните детектори, с които работим (с дебелини от 250 до 1100 μm) и да се определи оптимална дълбочина на ецване. Допълнителна цел бе да се оцени приноса на ДПР във водата към плътността на трековете. Основните резултати и изводи от прилагането на гореописания модел са следните:

- Приносът на източниците във водата към плътността на трековете може да се пренебрегне. Това е така, тъй като приносът на радона и ДПР във водата към трековете на повърхността на детектора е много по-малък от приноса на радона и ДПР, намиращи се вътре в поликарбоната. С помощта на модела бе сравнен приноса на двата източника при интегрирана обемна активност на радон във водата  $I_{\text{out}}=1 \text{ kBq.m}^{-3}.\text{h}$

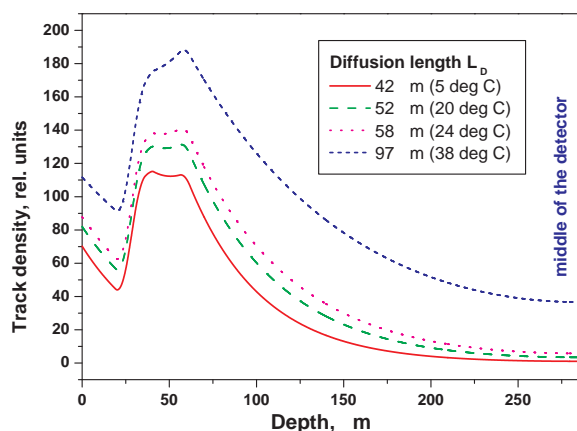




Фигура IV.13: Профили на плътността на трековете в поликарбонатни детектори с различна дебелина, облъчени във вода при температура 29°С. Профилите са симетрични спрямо средата на детекторите.

и при температура 25° (за тази температура експериментално е определена разтворимост  $K_{\text{water}}=100$  [122]). Тогава, плътността на трековете на повърхността на детектора, дължаща се на ДПР във водата, е 2 % от тази, дължаща се на абсорбирания радон и ДПР. Оценката е направена при предположение за равновесие между радона и ДПР във водата, т.е. е оценка за горната граница на плътността на трековете от този източник. Трябва да се има предвид, обаче, че когато във водата е налице само  $^{222}\text{Rn}$ , генериран от  $^{226}\text{Ra}$ , в нея може да са разтворени и други алфа-излъчващи нуклиди със сравними активности (например  $^{238}\text{U}$ ). Тогава, този процент може да се увеличи.

- Профилът на плътността на трековете в поликарбонатни детектори с дебелина по-голяма от 500  $\mu\text{m}$  е един и същ за дълбочини до 150  $\mu\text{m}$  (практически ецвания извън този интервал не се налагат). Това е илюстрирано на Фиг.IV.13, като моделирането е направено за сравнително висока температура и дължина на дифузия. При по-ниска стойност на дължината на дифузия профилите са още по-близки, тъй като дифузията на  $^{222}\text{Rn}$  през противоположната страна на детектора влияе по-малко.
- При температура 21° максимум на плътността на трековете в пластинки с дебелина  $L = 570 \mu\text{m}$  (DVD-та) се достига при дълбочина 57  $\mu\text{m}$  под повърхността (Виж Фиг.IV.10). Около максимума съществува сравнително широк интервал, в който плътността на трековете (и следователно калибровъчния коефициент) са почти постоянни. В него малки отклонения в дълбочината, на която са проявени трековете, не биха повлияли съществено на калибровъчния коефициент. Чрез предложения теоретичен модел е изследвана ширината на това квази-плато като функция на температурата на облъчване. На Фиг.IV.14 са илюстрирани профилите на плътността



Фигура IV.14: Профили на плътността на трековете в поликарбонатни детектори с дебелина  $L = 570 \mu\text{m}$ , облъчени във вода при различна температура. При получаването им не е отчетена зависимостта на разтворимостта на  $^{222}\text{Rn}$  от вода в поликарбонат от температурата (използвана е  $K_{\text{water}} = 100$ ), затова профилите не трябва да се сравняват количествено.

	Температура на облъчване		
Интервал дълбочини,	5°C	21°C	38°C
$\mu\text{m}$	(36.1 ÷ 58.5)	(38.2 ÷ 60.6)	(52.5 ÷ 62.5)

Таблица IV.6: Интервали, при които разликата в плътността на трековете при кои да е две дълбочини на ецване е под 2.5%. За всяка от температурите посоченият интервал включва дълбочината с максимална плътност на трековете.

на трековете при различни температури. В Таблица IV.6 са дадени интервалите от дълбочини, в които максималната разлика между кои да е две стойности на плътността на трековете е под 2.5%, получени за температури 5°, 21° и 38°. Както се вижда от таблицата, определените интервали са доста широки и се пресичат в интервала  $52.5 \div 58.5 \mu\text{m}$ . Можем да обобщим, че при температури в интервала от 5° до 38° оптималната дълбочина, която трябва да се цели при ецване е  $55 \div 56 \mu\text{m}$ . Тогава, отклонения в рамките на  $2 \mu\text{m}$  не биха довели до различна плътност на трековете. Наличието на плато около максимума на плътността на трековете е предимство на метода. Трябва да се има предвид, обаче, че при дълбочини до  $62 \mu\text{m}$  е възможен принос на отложените по повърхността ДПР.

## IV.2.2 Експериментални резултати

На база на резултатите от моделирането на дълбочинния профил на плътността на трековете бе избрано калибрирането да се проведе за три различни дълбочини - на  $60 \mu\text{m}$ , на  $80 \mu\text{m}$  и на повърхността. Дълбочината  $60 \mu\text{m}$  беше избрана, тъй като на тази дълбочина плътността на трековете е близка до максималната, като евентуалният принос на полевните по повърхността нуклиди е по-малък от този в интервала  $52.5 \div 58.5 \mu\text{m}$ . Дълбочината  $80 \mu\text{m}$  беше избрана, тъй като на тази дълбочина е изключена възможността за принос на

нуклиди във водата или полепнали по повърхността на детектора, включително и на  $^{220}\text{Rn}$  и неговите продукти. Избрано бе да се проведе и калибриране на повърхността, тъй като разработеният модел показва, че плътността на трековете на повърхността е близка до тази на  $80\ \mu\text{m}$  и е също неповлияна от полепнали по повърхността ДПР. Освен това, при ецване на повърхността не се налага предварително преецване и това прави обработката на дисковете по-бърза и лесна. От друга страна, недостатък на ецването на повърхността е по-високата фонова плътност в детекторите в сравнение с тази в дълбочина, която би довела и до по-висока минимална детектуема активност на метода. По-долу е описан лесен начин да се избегне този проблем.

#### IV.2.2.1 Избор на детектори с ниска фонова плътност на трековете

Фоновата плътност на трековете в комерсиално достъпните поликарбонатни детектори се увеличава с възрастта им, вероятно заради фоново облъчване от радон. Поради това, те трябва да бъдат съхранявани в несъдържаща радон атмосфера, което не винаги е приложимо на практика. По време на нашите изследвания, установихме ниска фонова плътност в детектори, изрязани от DVD-та. Дигителните видео дискове се състоят от два отделни поликарбонатни диска, долепени един за друг. Стига радонът да не прониква между двата диска, плътността на трековете върху вътрешните повърхности на дисковете (тези които са долепени) би трябвало да е ниска. За да проверим това, беше определена фоновата плътност на вътрешната повърхност на парчета от DVD и на дълбочина  $80\ \mu\text{m}$  под вътрешната повърхност. Тя беше сравнена с фоновата плътност на външната повърхност на парчета от същите дискове и на дълбочина  $80\ \mu\text{m}$  под външната повърхност. Определените средни плътности на трековете са дадени в Таблица IV.7. За сравнение нашият опит с поликарбонатни детектори, направени от нови CD-та (които се състоят само от една част) показва, че плътностите на трековете на  $80\ \mu\text{m}$  са обикновено в интервала  $1.5 \div 10\ \text{cm}^2$  (виж Фиг. III.17), а тези на повърхността са поне няколко пъти по-големи. Получените резултати показват, че вътрешната повърхност на DVD-та действително е защитена от радона във външната среда и има по-малка плътност на трековете.

Следователно, когато е необходимо да се използват поликарбонатни детектори с ниска фонова плътност, те могат да се приготвят от DVD-та като се използва вътрешната повърхност на дисковете, съставляващи DVD-тата. Това е особено полезно в случаите, в които ще се проявяват трековете на повърхността. Подготовката на детекторите е лесна, тъй като DVD-тата се разделят просто като се пъкне остро ножче между двете им половини. Фоновите плътности на трековете в така подготвените детектори са сравними с тези в поликарбонатни детектори, подложени на по-сложни процедури за редуциране на

Ецване на	Фонова плътност на трековете, $\text{cm}^{-2}$
външна повърхност	$> 200$
80 $\mu\text{m}$ под външната повърхност	$6.0 \pm 0.5$
вътрешна повърхност	$1.1 \pm 0.3$
80 $\mu\text{m}$ под вътрешната повърхност	$1.4 \pm 0.2$

Таблица IV.7: Фонова плътност на трековете в нови DVD на различни позиции в долната му половина, получена след отлепяне на двете му части. Дадени са средните стойности, определени за повече от 10 диска и стандартното отклонение.

фоновата плътност, като тридневен излагане на детекторите на температура  $120^\circ$  преди облъчването [72].

Всички детектори, използвани в описаните по-долу експерименти са приготвени от DVD-та по гореописания начин и са с дебелина приблизително  $L = 570 \mu\text{m}$ .

#### IV.2.2.2 Калибриране

При първата серия експерименти поликарбонатни детектори бяха облъчени във вода с известна обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$ . Беше използвана кладенчова вода с обемна активност на радона  $195.2 \text{ kBq.m}^{-3} \pm 4.6 \%$  (определена чрез гама-спектрометрични измервания с гореописания детектор от свръх чист германий. За анализа бяха използвани гама-линните на  $^{214}\text{Pb}$  с енергии 295 keV и 352 keV.

Детекторите бяха облъчени в пластмасови двулитрови бутилки от „Кока-кола“, които в хода на експериментите бяха тествани за херметичност по отношение на радона. Интегрираната обемна активност на радона, при която бяха облъчени детекторите във всяка бутилка бе определена като:

$$I_{Vout} = \frac{A_{V0}}{\lambda_{222}} (1 - e^{-\lambda_{222}T_{\text{exp}}}), \quad (\text{IV.33})$$

където  $A_{V0}$  е началната обемна активност на радона в бутилката,  $\lambda_{222}$  е константата на разпадане на  $^{222}\text{Rn}$  и  $T_{\text{exp}}$  е времето на облъчване. Различни стойности на  $A_{V0}$  бяха постигнати чрез смесване на кладенчовата вода с дестилирана в известни пропорции. Така бяха получени начални обемни активности на радона между 44 и  $195 \text{ kBq.m}^{-3}$ . Времето на облъчване на детекторите в различните бутилки също варираше (от 3 до 572 часа, но за повечето бутилки не надвишаваше 168 часа).

По време на облъчването бутилките бяха съхранявани в стая с температура  $21 \pm 2^\circ\text{C}$ , а след облъчването детекторите бяха оставени да дегазират в същата стая за един месец. Заедно с всеки детектор подготвен за облъчване, беше подготвен и фонов детектор от същия диск. Тези фонове детектори бяха оставени заедно с облъчените и

Дълбочина под повърхността, $\mu\text{m}$	Калибровъчен коефициент ( $CF^{wtr}$ ), $\text{cm}^{-2} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{l}^1 \cdot \text{h}^{-1}$
86	$0.072 \pm 0.004$
80	$0.076 \pm 0.005$
70	$0.082 \pm 0.005$
60	$0.096 \pm 0.006$
0	$0.080 \pm 0.009$

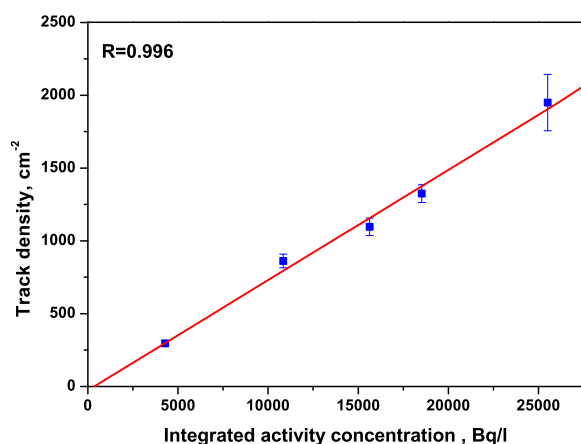
Таблица IV.8: Калибровъчни коефициенти при различни дълбочини на ецване на поликарбонатни детектори, облъчени във вода при температура  $21^\circ\text{C}$ . Въпреки че са определени за детектори с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$ , облъчени при експоненциално намаляваща активност, калибровъчните коефициенти са валидни и за по-дебели полакарбонати, облъчени при друг режим на активността. Посочените неопределености (на ниво  $1 \sigma$ ) включват неопределеността на съответния ъглов коефициент и неопределеността на обемната активност на водата, използвана за облъчването.

по-късно бяха обработвани заедно с тях.

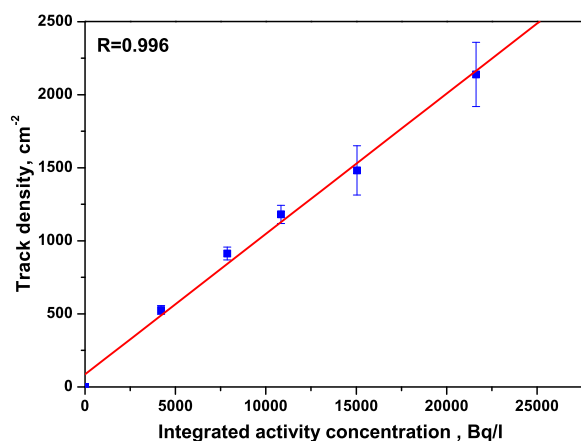
След дегазирането повечето детектори бяха разпределени в три основни групи. При химичното преецване от повърхността на дисковете от първата бе отнет слой с дебелина  $80 \mu\text{m}$ , а на дисковете от втората слой с дебелина  $60 \mu\text{m}$ . Дисковете от третата група не бяха преецвани. След това, поликарбонатните детектори бяха електрохимично ецвани според процедурата, описана в част III.1. Плътноста на трековете бе определена чрез броене с оптичен микроскоп.

Зависимостта между плътността на трековете и интегрираната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$ , при която са облъчени детекторите е показана на Фиг.IV.15 за групата, ецвана на  $80 \mu\text{m}$ , на Фиг.IV.16 за групата, ецвана на  $60 \mu\text{m}$  и на Фиг.IV.17 за групата, ецвана на повърхността. И в трите случая се наблюдава много добра корелация между плътността на трековете и интегрираната обемна активност на радона. Това позволява определянето калибровъчните коефициенти  $CF^{wtr}$  за всяка от горните дълбочини. Калибровъчните коефициенти са равни на ъгловите коефициенти на корелационните прави (Фиг.IV.15-Фиг.IV.17) и са представени в Таблица IV.8. В таблицата са представени и калибровъчни коефициенти за други две дълбочини -  $70 \mu\text{m}$  и  $86 \mu\text{m}$ , определени на базата на облъчвания при две различни обемни активности на  $^{222}\text{Rn}$  във водата.

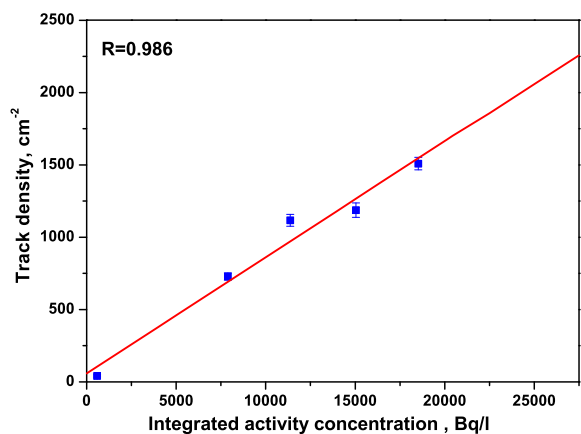
Получените резултати ясно показват, че ецването на поликарбонатни детектори, облъчени във вода може да се използва за количествени измервания на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водата. Разработеният метод, заедно с представения по-горе теоретичен модел и резултатите от измервания, представени в следващата част, са публикувани в литература [117].



Фигура IV.15: Зависимост между плътността на трековете на дълбочина 80  $\mu\text{m}$  и интегрираната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$ , при която е облъчен всеки детектор. Дадени са експерименталните точки и техните статистически неопределености. Даден е полученият коефициент на корелация и правата, описваща зависимостта, получена по метода на най-малките квадрати. Уравнението на правата е:  $y=ax+b$ , където  $a=0.076 \pm 0.004$  и  $b=-27 \pm 68$ .



Фигура IV.16: Зависимост между плътността на трековете на дълбочина 60  $\mu\text{m}$  и интегрираната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$ , при която е облъчен всеки детектор. Дадени са експерименталните точки и техните статистически неопределености. Даден е полученият коефициент на корелация и правата, описваща зависимостта, получена по метода на най-малките квадрати. Уравнението на правата е:  $y=ax+b$ , където  $a=0.096 \pm 0.004$  и  $b=86 \pm 50$ .



Фигура IV.17: Зависимост между плътността на трековете на повърхността и интегрираната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$ , при която е облъчен всеки детектор. Дадени са експерименталните точки и техните статистически неопределености. Даден е полученият коефициент на корелация и правата, описваща зависимостта, получена по метода на най-малките квадрати. Уравнението на правата е:  $y=ax+b$ , където  $a=0.080 \pm 0.008$  и  $b=58 \pm 95$ .

Дълбочина, $\mu\text{m}$	$CF^{wtr} / CF_{80}^{wtr}$	
	Експеримент	Модел
86	$0.96 \pm 0.07$	0.90
70	$1.09 \pm 0.09$	1.21
60	$1.26 \pm 0.11$	1.44
0	$1.05 \pm 0.14$	0.92

Таблица IV.9: Сравнение между калибровъчните коефициенти на трековия метод за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във вода, оценени експериментално и чрез моделиране. Дадени са стойностите на калибровъчните коефициенти за съответната дълбочина, нормирани на калибровъчния коефициент за дълбочина  $80 \mu\text{m}$  ( $CF_{80}^{wtr}$ ). За експериментално получените стойности е дадена неопределеността ( $1 \sigma$ ), а при моделирането не е оценена неопределеност.

### IV.2.2.3 Сравнение между теоретичния модел и експерименталните резултати

За да бъде направено сравнение между резултатите от модела и експеримента, плътностите на трековете, получени от модела за дълбочини 86, 70, 60 и  $0 \mu\text{m}$  са нормирани към плътността на трековете, получена от модела за дълбочина  $80 \mu\text{m}$ . Отношението на плътностите на трековете е равно на отношението на калибровъчните коефициенти за съответните дълбочини. Същата нормировка е приложена към експериментално оценените стойности на калибровъчния коефициент. Получените отношения са дадени в Таблица IV.9. И моделът и експерименталните резултати показват, че калибровъчният коефициент за дълбочина  $60 \mu\text{m}$  е по-голям от този за  $80 \mu\text{m}$ , докато калибровъчните коефициенти на повърхността и на  $80 \mu\text{m}$  са близки. Съгласуването между модела и експерименталните резултати показва, че моделът може да бъде прилаган за оптимизиране на измерванията. Той би могъл да бъде използван и за оценка на неопределеността на калибровъчния коефициент при разлики в дълбочината на ецване или температурата на облъчване.

### IV.2.2.4 Диапазон на приложимост на метода

Горната граница на обемната активност на радона, за която е приложим метода се достига при насищане на детектора. Както е показано в III.4.3, тази граница може да се увеличи чрез ецване на по-големи дълбочини. Например, при ецване на дълбочина  $160 \mu\text{m}$ , комбинирано с „ръчно“ броене на трековете с микроскоп, при време на облъчване 12 часа, методът може да даде количествени резултати до обемна активност на радона от  $10^4 \text{Bq.l}^{-1}$  (каквато рядко се среща във водоизточници).

Минималната Детектеруема Обемна Активност (MDAC) е оценена според подхода представен в Приложение Б.3. Оценката е направена при фонова плътност на трековете  $n_b = 2.0 \text{cm}^{-2}$  и при равни площи на ецване на фоновия и облъчения детектор

Дълбочина под повърхността	MDAC, Bq.l <sup>-1</sup>
80	0.073
60	0.058
0	0.069

Таблица IV.10: Минимална детектуема обемна активност при трековия метод за измерване на <sup>222</sup>Rn във вода при ецване на различни дълбочини на поликарбонати, облъчени при температура 21°C. Оценката е направен за фонова плътност 2.0 cm<sup>-2</sup> и ецвана площ на детекторите 4 cm<sup>2</sup>.

$S_b = S = 4 \text{ cm}^2$  (обикновено  $S \geq 4 \text{ cm}^2$ ). Получената оценка за критичното ниво при 95 % ниво на достоверност е  $L_c = 1.65 \text{ cm}^{-2}$ . Оценки за MDAC (също за 95 % ниво на достоверност) при време на облъчване 30 дни и при стойностите на калибровъчните коефициенти дадени в Таблица IV.8 са представени в Таблица IV.10.

Най-ниски са MDAC за ецване на 60  $\mu\text{m}$ . Въпреки това, когато е възможно във водата да има <sup>220</sup>Rn, детекторите трябва да бъдат ецвани на дълбочина поне 80  $\mu\text{m}$ . Това е достатъчно, за да се елиминира приноса на торона и продуктите му към плътността на трековете. Оценките за MDAC са значително по-ниски от стойността 100 Bq.l<sup>-1</sup>, която е референтното ниво за обемна активност на <sup>222</sup>Rn във вода, препоръчано от Комисията на Европейската Общност. Освен това, оценките за MDAC показват, че методът е подходящ и за измервания на <sup>226</sup>Ra във води чрез измерване на генерирания от него <sup>222</sup>Rn. Българската норма за <sup>226</sup>Ra в питейна вода е 0.15 Bq.l<sup>-1</sup> [123]. Следователно, методът е приложим за измервания на <sup>226</sup>Ra във води за целите на радиационната защита. Пилотни измервания на <sup>226</sup>Ra във вода са представени в следващата част.

## IV.2.3 Резултати от реални измервания

### IV.2.3.1 Пилотни измервания на <sup>226</sup>Ra във вода

Една от целите на настоящата работа бе да провери дали методът може да бъде приложен за измервания на обемната активност на <sup>226</sup>Ra във вода. Основната идея бе да се използват поликарбонатни детектори на следи, за да се измери обемната активност на <sup>222</sup>Rn, генериран от <sup>226</sup>Ra във водата. За да се провери приложимостта на този подход, бяха проведени пилотни експерименти. Два детектора с площ 12 cm<sup>2</sup>, приготвени от DVD-та, бяха облъчени в две водни проби с различна обемна активност на <sup>226</sup>Ra. Преди облъчването радонът бе премахнат от водата чрез интензивно барботиране с въздух. По този начин по време на облъчването <sup>222</sup>Rn във водата се получава само от разпадането на <sup>226</sup>Ra. Тогава, интегрираната обемна активност на <sup>222</sup>Rn във водата ( $I_{V_{\text{out}}}$ ) за време на облъчване  $T_{\text{exp}}$  е свързана с обемната активност на <sup>226</sup>Ra ( $A_{\text{Ra}}$ ) по следния начин:



$$I_{\text{Vout}} = A_{\text{Ra}} \left( T_{\text{exp}} - \frac{1 - e^{-\lambda_1 T_{\text{exp}}}}{\lambda_1} \right). \quad (\text{IV.34})$$

Облъчванията бяха направени в бурканчета с обем около 95 ml и продължиха 30 дни. След края им, детекторите бяха оставени да дегазират за един месец и бяха пре-  
ецвани до 80  $\mu\text{m}$ , а след това ецвани по описаната процедура. Температурата по време на  
облъчването и дегазирането беше  $14 \pm 2^\circ\text{C}$ .

Тъй като условията на облъчване се различаваха от тези описани в IV.2.2, беше  
проведено ново калибриране чрез облъчване на детектори при температура  $14^\circ\text{C}$ , в иден-  
тични бурканчета, съдържащи вода с известна обемна активност на радон. Полученият  
калибровъчен коефициент за дълбочина на ецване 80  $\mu\text{m}$  беше  $0.051 \pm 0.003 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{l} \cdot \text{h}$ .  
Разликата между този коефициент и дадения в Таблица IV.8 вероятно се дължи на по-  
ниската температура и на по-малкия обем на водата в този случай. По-ниската темпе-  
ратура води до по-нисък коефициент на дифузия и следователно, до по-ниска плътност  
на трековете (виж част IV.2.1). По-малкият обем на пробата може да доведе до значи-  
мо намаляване на активността на радона във водата, поради абсорбция в поликарбоната.  
Тъй като при експериментите, описани в IV.2.2, детектори с приблизително същия обем  
бяха облъчени в бутилки с обем 2 l, не е коректно определения при тях коефициент да се  
използва за бурканчета с обем 95 ml. Обемната активност на  $^{226}\text{Ra}$  в двете проби, оценена  
чрез ецване на облъчените поликарбонатни детектори, е дадена в Таблица IV.11.

Получените резултати бяха сравнени с резултати от измервания по независим  
метод - обемната активност в същите проби бе оценена и чрез гама-спектрометричен ана-  
лиз, при който бе използван детектора, описан в IV.1.2. За целта Проба 1, от която разпо-  
лагахме с около 2 l, беше преконцентрирана 39 пъти чрез изпаряване и беше измерена в  
геометрия 50 ml. цилиндър, поставен върху капачката на детектора. Анализът не показва  
наличие на други алфа-излъчващи нуклиди в пробата, освен  $^{226}\text{Ra}$  и продуктите му. Обем-  
ната активност на  $^{226}\text{Ra}$  беше оценена на база на гама-линията на  $^{226}\text{Ra}$  с енергия 186 keV.  
Обемът на проба 2 бе общо 95 ml. Гама-спектрометричните измервания на тази проба бяха  
проведени след като в нея беше облъчен поликарбонатния детектор. В пробата бяха де-  
тектирани  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  и някои от продуктите им, което затруднява гама-спектрометричния  
анализ, тъй като линията на  $^{226}\text{Ra}$  с енергия 186 keV е припокрита от линия на  $^{235}\text{U}$ . Зато-  
ва, първото измерване на Проба 2 беше проведено в затвореното бурканчето с обем 95 ml,  
като обемната активност на  $^{226}\text{Ra}$  във водата беше оценена по линиите на  $^{214}\text{Pb}$  с енергии  
295 keV и 352 keV, които не се припокриват с други линии. За да може да се приеме,  
 $^{214}\text{Pb}$  и  $^{226}\text{Ra}$  са в равновесие, измерването беше проведено един месец след затварянето  
на бурканчето. Ефективността за линиите с енергии 295 keV и 352 keV при измерване на

Номер на пробата	Обемна активност на $^{226}\text{Ra}$ , $\text{Bq.l}^{-1}$	
	Чрез облъчване на поликарбонати	Чрез гама-спектрометрия на водата
1	$0.95 \pm 0.10$	$0.90 \pm 0.09$
2	$12.0 \pm 1.1$ -	$9.5 \pm 1.1$ (в бурканче) $11.8 \pm 2.5$ (в 50 ml. цилиндър)

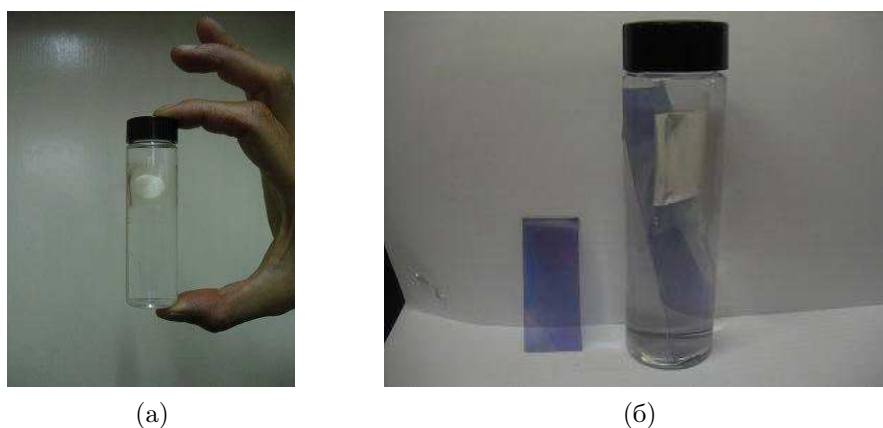
Таблица IV.11: Обемна активност на  $^{226}\text{Ra}$  в две водни проби, оценена чрез облъчване и ецване на поликарбонатни пластинки и чрез гама-спектрометрия. За Проба 2 са представени резултати от две измервания (условията, на които са описани в текста). Посочени са неопределеностите на ниво  $1 \sigma$ .

водата в бурканче, поставено върху капачката на детектора, бе оценена чрез Монте Карло моделиране с кодът PENELOPE 2006, като бе използвана известна геометрия на детектора (определена по метод, представен в [124]). Неопределеността при това измерване беше над 10 %, поради отчитане на възможни отклонения при описанието на геометрията на бурканчето. Второто измерване беше направено в геометрия 50 ml. цилиндър върху капачката на детектора, след прекоцентриране на пробата. Обемната активност на  $^{226}\text{Ra}$  беше оценена на база на гама-линията на  $^{226}\text{Ra}$  с енергия 186 keV, като бе направена корекция за наличие на  $^{235}\text{U}$  (както е показано в [121]). Проведената корекция доведе до неопределеност в резултата от над 20 %. Всяко от измерванията на пробите продължи поне 2 дни. Резултатите от гама-спектрометричния анализ също са представени в Таблица IV.11.

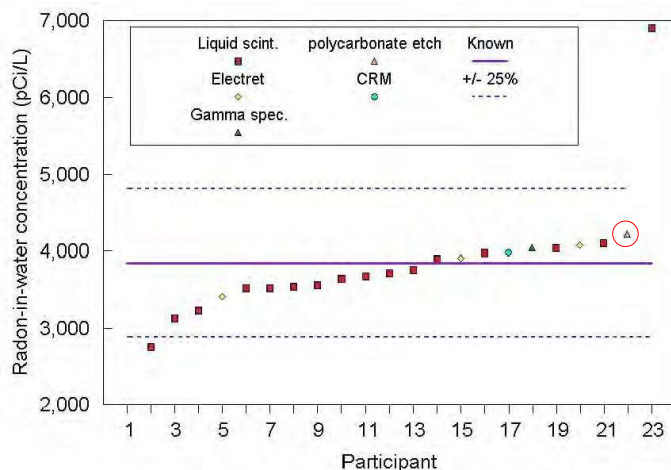
Резултатите, получени по двата метода се съгласуват добре в рамките на неопределеностите. Трябва да се отбележи, че измерванията чрез поликарбонатни детектори не изискваха концентриране на пробите, нито корекции за наличие на други нуклиди.

#### IV.2.3.2 Участие в международно сравнение

Предложеният тук метод бе използван и при международно сравнение по измервания на радон във води, организирано през 2009г. от Nuclear Chemistry Laboratory, New York State Department of Health [125]. Организаторите на сравнението ни изпратиха водна проба с обем 42 ml в шишенце, в която източникът на радон е филтър импрегниран с  $^{226}\text{Ra}$  (Фиг.IV.18a). Филтърът е опакован в полиетилен, който пропуска генерирания  $^{222}\text{Rn}$ , но не позволява на радия да се разтвори във водата. Поликарбонатен детектор, приготвен от DVD бе облъчен директно в шишенцето без да се отстранява филтъра (Фиг.IV.18б). Облъчването бе с продължителност 40 часа и след това трековете бяха проявени на дълбочина 80  $\mu\text{m}$ . За оценка на обемната активност бе използван калибровъчният коефициент за дълбочина 80  $\mu\text{m}$  (даден в Таблица IV.8), като бе приложена корекция за малък обем на пробата (подходът за оценка на корекцията е представен в литература [126]). На Фиг.IV.19 са показани резултатите, получени от участниците в сравнението. Полученият



Фигура IV.18: Снимки на пробата вода, изпратена при международното сравнение по измервания на радон във води: (а)при получаването; (б) след поставене на поликарбонатен детектор (парче от DVD) в нея.



Фигура IV.19: Резултати от проведеното международно сравнение по измервания на радон във води. От 23 участника, 21 са дали резултат в рамките на 25 % от референтната стойност, като повечето участници са използвали течно-сцинтилационно броене. Резултатът получен от нас чрез облъчване на поликарбонати е ограден. Фигурата е представена в литература [125].

от нас резултат бе в рамките на 10 % от референтната стойност. Успешното ни участие в това сравнение е още един аргумент за това, че трековият метод, предложен в тази работа, може да се прилага за количествени измервания на  $^{222}\text{Rn}$  във води.

### IV.3 Сравнение с други методи за измерване на $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ във води

Методите за измерване на  $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$  във води са разгледани основно в контекста на нуждите на радиационната защита. За нуждите на контрола на нивата на  $^{222}\text{Rn}$  във водоизточници е достатъчно с метода да могат да бъдат детектирани обемни активности на радона под  $100 \text{ Bq.l}^{-1}$ . Това е референтната стойност, препоръчвана от Комисията на Европейската Общност, над която Страните Членки на Европейския Съюз трябва да определят референтно ниво на обемната активност на радон, което да се използва при решения за вземане на мерки за защита на човешкото здраве [127]. Според гореспомена-

тата препоръка измерване във водоизточника е достатъчно, за да покаже съответствие с референтната концентрация и не са необходими измервания на отделните места, на които се използва водата. Световната здравна организация също препоръчва мерки за снижаване нивата на радон в източниците на питейна вода при обемни активности, надвишаващи  $100 \text{ Bq.l}^{-1}$  [128]. Изискванията към *MDAC* на методите за измерване на  $^{226}\text{Ra}$  в питейна вода са по-стриктни, тъй като  $^{226}\text{Ra}$  е силно радиотоксичен при поглъщане. Той се натрупва в костите и може да причини костна саркома и левкемия. Поради това,  $^{226}\text{Ra}$  е класифициран като карценоген от група-А и съдържанието му в питейна вода подлежи на контрол. В България действащата норма за обемната активност на  $^{226}\text{Ra}$  в питейна вода е  $0.15 \text{ Bq.l}^{-1}$  [123]. Агенцията за защита на околната среда в САЩ (USEPA-United States Environmental Protection Agency) е постановила общо максимално ниво на замърсяване с  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{228}\text{Ra}$  във води, което е  $0.185 \text{ Bq.l}^{-1}$ , като измервания на  $^{228}\text{Ra}$  се изискват, когато обемната активност на  $^{226}\text{Ra}$  надвишава  $0.111 \text{ Bq.l}^{-1}$  [129].

Освен в радиационната защита, измерванията на  $^{222}\text{Rn}$  и на  $^{226}\text{Ra}$  във води намират широко приложение в хидрогеологията и океанографията. И радонът (виж цитиранията в [130]) и радия (виж например [131]) независимо се използват като маркери за проследяване на транспорта и смесването на водни потоци в различни водни басейни. За тези цели са необходими методи, детектиращи обемни активности под  $1 \text{ mBq.l}^{-1}$ . Обемните активности на  $^{222}\text{Rn}$ , измерени при такива изследвания, са от  $\mu\text{Bq.l}^{-1}$  (в открития океан) до десетки  $\text{Bq.l}^{-1}$  (подпочвени води) [130].

Другите критерии за избор на конкретен метод за измерване на  $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$  (освен *MDAC*) са свързани с конкретната методика. По-важните въпроси при избора на методи са: Какъв тип детекторни системи са необходими? Какво е характерното време за измерване и колко проби могат да се измерят за определен период от време? При измервания на  $^{222}\text{Rn}$  необходимо ли е вземането на водна проба и в какво количество или измерването може да се проведе на място? Изисква ли се предварителна обработка на пробата при измервания на  $^{226}\text{Ra}$ , например прекоцентриране или радиохимично сепариране на  $^{226}\text{Ra}$ ?

Съществуват голям брой техники за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води. Най-общо те могат да се разделят на две групи. При първите  $^{222}\text{Rn}$  от водата се отделя във въздух (или в друг газ) и впоследствие се измерва радона във въздуха. При втората група техники  $^{222}\text{Rn}$  се измерва във водата. Трябва да се има предвид, че когато  $^{222}\text{Rn}$  се измерва във въздух, резултатите са зависими от температурата, тъй като от нея зависи равновесното съотношение на обемните активности на радона във въздуха и във водата. Може би най-старият подход за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води е все още широко използван - при

него  $^{222}\text{Rn}$  се дееманира от водната проба чрез барботиране с въздух, несъдържащ радон. Алтернативно, водата може да се впръсква от едната страна на въздушен обем и да се изпомпва от другата. Активността на радон във въздуха се измерва чрез камера на Лукас [132], йонизационна камера или чрез спектрометричен силициев детектор в дифузионна камера. В последните години за измервания чрез дееманиране се използват комерсиални радонови монитори, в които е вграден някой от горните детектори. Разработени са и преносими устройства за провеждане на измервания на място във водна проба [130, 133] или директно във водния басейн [134, 135]. Нов подход за извличане на  $^{222}\text{Rn}$  от водата е предложен в литература [136]. Водата се прекарва през тръба, в която е поставена тръбичка със стени от пропускаща радон мембрана. В тръбичката циркулира въздух, активността на който се измерва чрез камера на Лукас. Според автора на метода, той е много подходящ за полеви измервания, тъй като консумира малка електрическа мощност [136]. Впоследствие са разработени и други устройства за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води чрез дифузионни мембрани [137, 138].

Предложени са и методи, в които за измерванията на  $^{222}\text{Rn}$  във въздух (след отделянето му от водата), се използват пасивни детектори - електретни [139] и трекови [140]. Електретните детектори се облъчват във въздух, намиращ се над водната проба, но не винаги дават надеждни резултати [141]. Трековите детектори могат да се облъчат и директно във водоизточника [140, 142, 143], като се поставят в запечатана дифузионна камера [140] или полиетиленова торбичка [142, 143]. По този начин до детекторите може да достига радон, но не и вода. В литература [140] е коментирано, че използваните трекови детектори LR-115II имат около 3 порядъка по-голяма ефективност за измервания на радон, когато са облъчени в дифузионна камера, отколкото когато са директно потопени във водата. Това е така, тъй като за разлика от поликарбонатите тези детектори не притежават способността да абсорбират  $^{222}\text{Rn}$ . Като основно предимство на прилагането на трекови детектори е изтъкната ниската им цена и възможността за паралелно измерване на голям брой проби.

Методите, измерващи  $^{222}\text{Rn}$  директно във водата са гама-спектрометрия и течносцинтилационно броне. Измерванията чрез тези методи се провеждат в лабораторни условия. Макар че, има установки за прилагането им на място, те не позволяват нискофоновы измервания и са свързани с високо *MDAC*. При гама-спектрометрията се регистрират ДПР на радона  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ . Тя се провежда с германиеви и сцинтилационни детектори (обикновено  $\text{NaI(Tl)}$ ). Недостатък на гама-спектрометрията е, че за да могат да бъдат детектирани обемни активности от порядъка на десетки  $\text{mBq.l}^{-1}$  са необходими големи обеми на пробата (10 l) и дълги времена на измерване (дни). Течната сцинтилация

е може би най-широко прилагания метод за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води [2]. Тя е предпочитана, поради добрата си точност, ниския праг на детектиране (виж Таблица IV.12), лесната подготовка и малкия обем на пробите, бързите измервания и възможността за автоматично пробосменяне. Недостатък на метода е високата стартова цена за закупуване на нискофонова установка за течносцинтилационно броене. Разработени са и некомерсиални установки, при които прагът на детектиране допълнително може да се намали чрез броене на съвпадащи си по време импулси (дължащи се на  $^{214}\text{Bi}$  и  $^{214}\text{Po}$ ) [144].

Метод	Обем на пробата, l	Време за анализ, h	MDAC Bq.l <sup>-1</sup>
Дифузионна мембрана и камера на Лукас [136]	Директно	1	<1
Дифузионна мембрана и RAD7 [138]	6	7	0.03
Дееманиране и RAD7 [135]	Директно	1	<0.02
Дееманиране и RAD7 [130]	4	24	0.001
Нискофонов LSC [145]	0.01	3.3	0.1
LSC със съвпадения [144]	0.2	3	0.008
PC и бета/гама-измервания [118]	0.5 / директно	48	12
PC и ецване на алфа-трекове [117]	0.5 / директно	1152	0.06

Таблица IV.12: Сравнение между методи за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води. Използвани са съкращенията: LSC - течносцинтилационен брояч, PC - поликарбонат.

В Таблица IV.12 са представени минималните детектуеми обемни активности за няколко различни метода. Таблицата не е изчерпателна, но включва най-ниските MDAC, намерени в литературата. Вижда се, че всеки от методите е с достатъчно ниска MDAC, за да позволява контролни измервания на  $^{222}\text{Rn}$  във водоизточници. Методите, използващи преносими монитори са от интерес главно за хидрогеоложките и океанографски изследвания, тъй като изискват проби с голям обем или изпомпване на вода от воден басейн. Това в някои случаи може да е пречка при измервания в източниците на питейна вода. Предимство на поликарбонатния метод пред методите, използващи преносими монитори, е възможността за едновременни измервания в голям брой точки. Поради тази възможност поликарбонатният метод, комбиниран с бета/гама-измервания, може да съперничи на течносцинтилационното броене при измервания с цел контрол на нивата на  $^{222}\text{Rn}$  във водоизточници.

По принцип, методите за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във вода могат да бъдат прилагани и за измервания на  $^{226}\text{Ra}$  във вода. За целта се използват водни проби, от които при пробовземането е премахнат радона, така че генерираният след това радон е свързан с радия във водата. Често след пробовземането се прилага и прекоцентриране на водата чрез изпаряване, за да се постигне по-висока обемна активност на  $^{226}\text{Ra}$ . Обикновено се изчаква около 30 дни, за да настъпи равновесие между  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{222}\text{Rn}$  във водата. След

това се провежда измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във водата.

Другият основен подход за измерване на  $^{226}\text{Ra}$  във води се реализира чрез извличане на  $^{226}\text{Ra}$  от водата с радиохимични методи. След извличането се използват различни подходи за измерване на  $^{226}\text{Ra}$ , например течносцинтилационно броене, алфа-спектрометрия, масспектрометрия и т.н. (виж цитиранията в направеното в литература [146] сравнение). Представеният в литература [147] метод достига *MDAC* за  $^{226}\text{Ra}$  във води от  $0.12 \text{ mBq.l}^{-1}$ , като прилага преконцентриране на  $^{226}\text{Ra}$  с  $\text{BaSO}_4$ , сепарирание от други нуклиди с помощта на хроматографски колони и йонно-обменни смоли и последваща алфа-спектрометрия на получената чрез електроотлагане проба. Според литература [148] по-лесен метод за извличане на  $^{226}\text{Ra}$  от води се реализира чрез филтри/влакна с  $\text{MnO}_2$ , които се предлагат и комерсиално. При измерване на такива филтри чрез алфа-спектрометрия е постигнато *MDAC* от  $0.5 \text{ mBq.l}^{-1}$  [146]. Освен това, методът може да се използва и за измерване на други изотопи на радия, които са от интерес за хидрогеологията. Предложени са и други подходи за измерване на  $^{226}\text{Ra}$ , концентриран от филтри или влакна с  $\text{MnO}_2$ , включително измерване на генерирания от радия  $^{222}\text{Rn}$  [149].

Несъмнено методите, прилагащи радиохимично преконцентриране на  $^{226}\text{Ra}$ , позволяват измерване на по-ниски обемни активности на  $^{226}\text{Ra}$  във води от предложения поликарбонатен метод. Те са по-подходящи при измервания във водни басейни с ниска концентрация на  $^{226}\text{Ra}$ , например в океански води. Въпреки това, *MDAC* на поликарбонатния метод, реализиран чрез ецване на трекове от алфа-частици, е достатъчно ниско за провеждане на измервания на  $^{226}\text{Ra}$  във води за целите на радиационната защита. Неговата *MDAC* може допълнително да се намали чрез преконцентриране на пробата чрез изпаряване. Предимство на метода е неговата ниска цена. Освен това, той не изисква прилагане на радиохимични методи и/или използване на скъпи детекторни системи. Основен недостатък на метода е дълготното време, необходимо за облъчване и последващо дегазиране на поликарбонатите. Това донякъде се компенсира от факта, че с метода могат паралелно да се провеждат измервания на голям брой проби. Работата на поликарбонатния метод при ниски обемни активности на  $^{226}\text{Ra}$  във води предстои да се изследва.





## Глава V

### Заклучение

Настоящата работа е свързана с един от най-сериозните радиологични проблеми на човечеството - облъчването, дължащо се на  $^{222}\text{Rn}$ . Ключови за решаването на проблема са откриването на рискови сгради и райони и оценяването на риска за здравето на човека, формиран от излагане на  $^{222}\text{Rn}$ . В глава II са формулирани критериите за избор на методи за измерване на  $^{222}\text{Rn}$ , имащи за цел откриване на проблемни сгради и райони. Те трябва от една страна да са методологично прости, бързи и евтини и от друга да са с ниска неопределеност и да са надеждни (да е малка вероятността за подценяване на резултата). Единственият директен подход за оценка на риска, формиран от  $^{222}\text{Rn}$ , е провеждането на епидемиологични проучвания, в които е препоръчително да се използват ретроспективни методи. Добрият ретроспективен метод трябва да позволява оценка на обемните активности на  $^{222}\text{Rn}$  поне 15 години назад, да дава резултати и при ниски обемни активности (при които живеят повечето хора) и да е приложим за хора, променяли жилището си. Направеното в глава II сравнение между ретроспективните методи, показва че компакт-дискният метод е най-подходящ за ретроспективни измервания на  $^{222}\text{Rn}$  и едновременно с това не отстъпва на методите, рутинно прилагани за откриване на проблемни сгради. Той е точен, надежден, лесен за прилагане и с ниска цена.

В глава III са представени изследванията върху компакт-дискния метод, проведени в лаборатория „Дозиметрия и лъчезащита“ в Софийския университет. При тях са реализирани едни от първите реални измервания чрез CD/DVD-та. С цел развиване на метода за масово прилагане, е разработен алгоритъм за автоматично броене на електрохимично ецвани трекове от алфа-частици в CD/DVD-та. Алгоритъмът се прилага върху сканирани изображения на дискове, като броенето на трековете се реализира чрез компютърна програма, наречена DGTrack. В глава III автоматичното броене с DGTrack е сравнено с „ръчно“ броене. Показано е, че програмата се справя успешно в широк диапазон от плътности на трековете (до  $2000 \text{ tr.cm}^{-2}$ ), като брой с една и съща ефективност

нови дискове и стари, надраскани дискове. Демонстрирано е, че автоматичното броене с DGTrack е по-бързо, не натоварва оператора и води до по-ниска статистическа неопределеност на оценената плътност на трековете.

В глава III е представена разработената процедура за калибриране на дискове. Описан е начина за оценка на калибровъчния коефициент и неговата неопределеност. Представени са резултати от проведени калибрвания. Показано е, че между калибровъчните коефициенти на дисковете се наблюдават разлики, които в отделни случаи достигат до 45 %. Препоръчан е следният подход: след обработка на диска да се направи първоначална оценка на средната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  на базата на среден калибровъчен коефициент ( $CF_{\text{av}} = 0.020 \pm 0.003 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{kBq}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ ). В случай, че обемната активност не надвишава  $50 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$  е допустимо тази оценка да се използва, за да се спести време при мащабна кампания. В случаите, когато ретроспективните измервания се провеждат с цел епидемиологични проучвания е коректно всеки от дисковете да се подложи на индивидуално *a posteriori* калибриране. При *a posteriori* калибриране типичната неопределеност на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  е оценена на 20 %, а при използване на среден калибровъчен коефициент на 26 % (без прилагане на температурна корекция). Направена е и оценка на грешката, която може да се допусне, поради факта, че фоновата плътност в дисковете е по правило неизвестна - при диск облъчен 5 години обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  може да се подцени с до  $13 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ . За да се избегне надценяване, е препоръчително да се използват по-стари дискове и/или да се обработват няколко диска.

В глава III са представени резултати от участието ни в международно сравнение по измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във въздух чрез компакт-дисквия метод. Получените от нас резултати съвпадат с референтната стойност в рамките на 17 %, при облъчване съответстващо на средна обемна активност от  $164 \text{ Bq} \cdot \text{m}^3$  за една година или  $41 \text{ Bq} \cdot \text{m}^3$  за четири години. Освен това, е проведено и сравнение в реални условия между компакт-дисквия метод и метода на дифузионните камери (проследим до международен радонов стандарт). Резултатите, получени по двата метода, показват много добро съвпадение. В глава III са представени и обобщени резултати от над 400 измервания в реални сгради. Част от тях са проведени в рискови райони и са открити сгради с радонов проблем. Предложен е и подход за проследяване на резки промени в обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  чрез използване на два диска с различна възраст. Направено е сравнение между различни методи за датиране на дисковете. При част от проведените измервания е оценена събираемостта на дисковете - тя е между 32 и 50 %. На база на събрания опит, е предложена схема за организация на измерванията при бъдещи мащабни проучвания чрез компакт-дисквия метод.

Глава IV от дисертацията е посветена на измервания на  $^{222}\text{Rn}$  във води, който е

един от възможните източници на радона в сгради. Освен това, е проверена възможността за измерване на  $^{226}\text{Ra}$  във води, който е канцероген от група-А. Освен за радиационната защита измерванията на  $^{222}\text{Rn}$  и  $^{226}\text{Ra}$  във води са от интерес и за хидрогеологията, сеизмологията и др. И двата разработени метода за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във вода имат предимството, че могат да бъдат прилагани директно във водоизточника, без да се налага вземане на проби. Освен това те са евтини, лесни за прилагане и позволяват паралелни измервания в много точки. Например, едновременно могат да се провеждат измервания в различни водоизточници или в различни части на един воден басейн (последното би могло да намери приложение в хидрогеоложките изследвания).

Първият от разработените методи за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във вода се реализира чрез бета/гама-измервания на облъчени във водата поликарбонати. Избрани са оптимални условия на облъчване и за тях са получени калибровъчни коефициенти. Оценената минимална детектуема обемна активност на метода е  $12 \text{ Bq.l}^{-1}$ , което е под препоръчаната от Европейската Комисия стойност за референтното ниво за  $^{222}\text{Rn}$  във водоизточници от  $100 \text{ Bq.l}^{-1}$ . Предложеният метод позволява бързи измервания (до 24-48 часа) за целите на радиационен контрол на  $^{222}\text{Rn}$  във водоизточници.

Вторият разработен метод се реализира чрез ецване на облъчени във водата поликарбонати. За целите на оптимизиране на метода е разработен модел, пресмятащ дълбочинното разпределение на плътността на трековете в детектори, облъчени във вода. Резултатите от модела показват, че калибровъчните коефициенти за детектори с дебелина над  $500 \mu\text{m}$  не се различават до дълбочини от  $150 \mu\text{m}$ . Предимство на метода, демонстрирано от модела, е че плътността на трековете е почти постоянна в широк интервал около максимума си. При температури на облъчване от 5 до  $38^\circ\text{C}$  е препоръчително да се ецва на дълбочина  $55 \div 56 \mu\text{m}$ , тъй като отклонения в дълбочината до  $2 \mu\text{m}$  ще доведат до разлика в калибровъчния коефициент по-малка от 2.5 %. Трябва да се има предвид, обаче, че при дълбочини до  $62 \mu\text{m}$  е възможен принос на отложените по повърхността ДПР, който не е оценен от предложения модел. В глава IV са дадени и експериментално получените калибровъчни коефициенти за 5 различни дълбочини на ецване. Диапазонът от обемни активности на радона, за които методът е приложим е от  $0.06 \text{ Bq.l}^{-1}$  (при температура на облъчване  $21^\circ\text{C}$ ) до  $10^4 \text{ Bq.l}^{-1}$ . Това показва, че трековият метод може да се прилага и за измервания на  $^{226}\text{Ra}$  за целите на радиационната защита. Проведеното пилотно измерване на  $^{226}\text{Ra}$  в две водни проби показва съгласуваност между резултатите, получени чрез облъчване на поликарбонати и чрез гама-спектрометрия на водата. В глава IV са представени и резултати от международно сравнение по измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във вода, в което участвахме чрез този метод. Полученият от нас резултат е в рамките на 10 % от

референтната стойност при допустимо отклонение от 25 %.

## Приноси

Приносите на дисертацията, за които авторът има водеща роля, са:

- Изследвани са източниците на неопределеност на средната обемна активност, оценена ретроспективно чрез компакт-дисквия метод. Оценена е величината на грешките, които могат да бъдат допуснати, поради неизвестната фонова плътност на трековете в дисковете и поради използване на средни калибровъчни коефициенти. Направено е сравнение между различни методи за датирание на дисковете. С компакт-дисквия метод е участвано успешно в международно сравнение, организирано от НРА, УК.
- Изследвана е работата на новоразработения алгоритъм за броене на електрохимично ецвани трекове в CD/DVD и са подбрани подходящи входни параметри. Оценени са възможностите на алгоритъма чрез сравнение с визуално броене с оптичен микроскоп. Направените изследвания осигуряват коректни и възпроизводими резултати при прилагане на алгоритъма.
- Предложен е подход за проследяване на резки промени в обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  чрез ретроспективни измервания с два или повече диска с различна възраст. Важно приложение на този подход е за регистриране на високи обемни активности на  $^{222}\text{Rn}$  в миналото, променени след реконструкция на сградата, както и за оценка на ефективността на противорадонови инсталации.
- Предложен е и е изследван нов чувствителен метод за измерване на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  и  $^{226}\text{Ra}$  във води чрез ецване на трекове от алфа-частици в поликарбонати, директно облъчени във водата. Проведено е калибриране и получените калибровъчни коефициенти са използвани за реални измервания на  $^{222}\text{Rn}$  и  $^{226}\text{Ra}$  във води. С азработения треков метод е участвано успешно в международно сравнение по измерване на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във води, организирано от New York State Department of Health. Това показва, че предложеният метод може да се прилага за точни количествени измервания на  $^{222}\text{Rn}$  във води.
- Получени са теоретични изрази, описващи дълбочинното разпределение на плътността на трековете в поликарбонатни пластинки, облъчени във вода, в интервала от 0 до 70  $\mu\text{m}$  под повърхността. Те позволяват оптимизиране на трековия метод за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  и  $^{226}\text{Ra}$  във води чрез избор на дълбочина на ецване, водеща да по-ниска минимална детектеруема обемна активност.

## Публикации, в които са представени резултатите от дисертацията

### Публикации в списания

1. I. Dimitrova, D. Pressyanov, S. Georgiev and P. Yankov. Logistic of surveys of retrospective radon concentrations by home stored CDs/DVDs. *Radiat. Prot. Dosim.*145(2-3):300-304, 2011.
2. I. Dimitrova, K. Mitev, D. Pressyanov, S. Georgiev, T. Boshkova. Measurements of  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in water by absorption of radon in polycarbonates and etching alpha-tracks. *Radiat. Meas.* 46(1):119-126, 2011.
3. D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, I. Dimitrova. Radon mapping by retrospective measurements - an approach based on CDs/DVDs. *J. Env. Radioact.* 10:821-825, 2010.
4. K. Mitev, Y. Madzhunkov, G. Gerganov, I. Dimitrova, S. Georgiev, D. Pressyanov. An Algorithm for Automatic Counting of Electrochemically Etched Tracks in Compact Disks. Application to Retrospective Measurements of Rn-222. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 57(1):300-308, 2010
5. D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, E. Hristova, K. Mitev. Measurement of radon-222 in water by absorption in Makrofol. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. A* 574:202-204, 2007.
6. I. Dimitrova, K. Mitev, D. Pressyanov, S. Georgiev. Desorption of  $^{222}\text{Rn}$  from Polycarbonate Samples. *Trans. BgNS*, 12:33-37, 2008.

### Доклади, публикувани в пълен текст в сборници с доклади от конференции

1. D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, K. Mitev. Radon survey based on home stored CDs/DVDs. *Proceedings of Third European IRPA Congress, 2010.*:P03-14. <http://www.irpa2010europe.com/proceedings.htm>
2. И. Димитрова, С. Георгиев, К. Митев, Т. Бошкова, Д. Пресиянов. Корекция за облъчване в малък обем при измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води чрез абсорбция в поликарбонати. *Сборник доклади от XX национален научен симпозиум Метрология и метрологично осигуряване 2010*:254-259, 2010.

3. И. Димитрова, С. Георгиев, К. Митев, Д. Пресиянов. Калибриране на компакт дискове за измервания на Радон-222 във въздух. *Сборник доклади от XIX национален научен симпозиум Метрология и метрологично осигуряване 2009*:347-354, 2009
4. D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, K. Mitev. Measurement of  $^{222}\text{Rn}$  by absorption in polycarbonates - research and practice. *Conference Proceeding, 18th AARST International Radon Symposium, Las Vegas, 14 - 17 September 2008*:1-10, 2008. [http://aarst.org/radon\\_research\\_papers.shtml](http://aarst.org/radon_research_papers.shtml)
5. К. Митев, Y. Madzhunkov, G. Gerganov, I. Dimitrova, S. Georgiev, D. Pressyanov. An algorithm for automatic counting of electrochemically etched tracks in compact disks used for retrospective measurements of radon-222. *2008 Nuclear Science Symposium, Dresden, Germany 19-25 October 2008*. IEEE-NSS Conf. record: 1000508:827-832.

## Глава VI

### Приложения

#### Приложение А. Теоретично описание на процесите на сорбция и десорбция на $^{222}\text{Rn}$ в поликарбонати. Следствия.

Представеният тук теоретичен модел е публикуван [74]. Макар че в настоящата работа, разработеният модел се прилага само за  $^{222}\text{Rn}$ , той е по-общ и би могъл да се прилага и за други радиоактивни благородни газове. В литература [74], е показано, че моделът дава резултати, които добре се съгласуват с тези от експерименталните изследвания, както за  $^{222}\text{Rn}$ , така и за  $^{85}\text{Kr}$  и  $^{133}\text{Xe}$ . В модела са направени следните основни допускания:

- Поликарбонатен образец с известна форма се намира в безкрайна среда (въздух или вода), в която обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  като функция на времето е известна. Тъй като считаме външната среда за безкрайна, обемната активност на радона в нея не се влияе от наличието на поликарбонатния образец, който абсорбира радон. Разгледани са два режима на облъчване, чрез които могат да се опишат повечето срещани в практиката случаи - режим на постоянна външна обемна активност (режим А) и на експоненциално намаляваща, поради радиоактивното разпадане на  $^{222}\text{Rn}$ , външна обемна активност (режим В).
- На границата среда/поликарбонат се наблюдава скок на обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$ , т.е.  $c(x, y, z)|_{\text{surface}} = Kc_{\text{out}}$ , където  $K$  наричаме разтворимост на радона от съответната среда в поликарбонат. В случая на въздушна среда  $K$  зависи от температурата [75], като температурна зависимост може да се очаква и в случая на водна среда.
- Приема се, че транспортът на радоновите атоми в поликарбоната се осъществява чрез дифузия. Тогава за концентрацията на радоновите атоми  $c$  е валидно следното

уравнение:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \left( \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right) - \lambda_{222}c, \quad (\text{A.1})$$

където  $D$  е коефициентът на дифузия на  $^{222}\text{Rn}$  в поликарбоната. Този коефициент също е температурно зависим [75]. По нататък в разглежданията, той участва и неявно чрез дължината на дифузия  $L_D$ . Тя има смисъл на средното разстояние, което изминава един атом преди да се разпадне -  $L_D = \sqrt{\frac{D}{\lambda}}$ .

Горното уравнение се разглежда при начално условие  $c(x, y, z, t = 0) = c_0(x, y, z)$  и гранични условия:  $c(x, y, z)|_{\text{surface}} = Kc_{\text{out}}(t)$ . Общото решение на уравнението се дава от израза:

$$\begin{aligned} c(x, y, z, t) = & \int_{V_{\xi\eta\zeta}} \int \int G(x, y, z, t, \xi, \eta, \zeta, \tau = 0) c_0(\xi, \eta, \zeta) d\xi d\eta d\zeta - \\ & - D \oint_{S_{\xi\eta\zeta}} \int_0^t \frac{\partial G(x, y, z, t, \xi, \eta, \zeta, \tau)}{\partial \nu_{\xi\eta\zeta}} Kc_{\text{out}}(\tau) dS_{\xi\eta\zeta} d\tau \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

където  $V_{\xi\eta\zeta}$  е обемът на поликарбонатния обръзец, а  $S_{\xi\eta\zeta}$  е повърхността му, представени в координати  $\xi, \eta, \zeta$ ;  $G(x, y, z, t, \xi, \eta, \zeta, \tau)$  е функцията на Грийн за уравнението (A.1) при дадените начални и гранични условия, а  $\frac{\partial G}{\partial \nu}$  е производната и в посока по нормалата към  $S_{\xi\eta\zeta}$ . Познаването на функцията на Грийн за дадената форма на образеца е достатъчно, за да се намери решение на поставената задача. В литература [74] такива решения са получени за тънки пластинки и за цилиндрични гранули. Тук е представен само първия случай, тъй детекторите (включително CD/DVD-тата), използвани при изследванията в дисертацията, представляват тънки пластинки (с дебелина много по-малка от останалите им размери).

## A.1 Решение за тънки пластинки

Нека оста  $Ox$  е перпендикулярна на повърхностите на пластинката, като  $x = 0$  и  $x = L$  са координатите на двете гранични повърхности, а  $L$  е дебелината на пластинката. Ако пренебрегнем краевите ефекти, уравнение (A.1) приема едномерна форма:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - \lambda_{222}c \quad (\text{A.3})$$

със следните начални и гранични условия:  $c(x, 0) = c_0(x)$  and  $c(0, t) = c(L, t) = Kc_{\text{out}}(t)$ . За уравнение (A.3) общото решение има вида:



$$c(x, t) = \int_0^L G(x, \xi, t, \tau = 0) c_0(\xi) d\xi + D \int_0^t \left[ \left( \frac{\partial G(x, \xi = 0, t, \tau)}{\partial \xi} - \frac{\partial G(x, \xi = L, t, \tau)}{\partial \xi} \right) K c_{\text{out}}(\tau) \right] d\tau \quad (\text{A.4})$$

Функцията на Грийн за уравнение (A.3) е:

$$\begin{aligned} G(x, \xi, t, \tau) &= \frac{2}{L} \sum_{m=1}^{\infty} e^{-\left[\left(\frac{m\pi}{L}\right)^2 D + \lambda_{222}\right](t-\tau)} \sin\left(\frac{m\pi}{L}x\right) \sin\left(\frac{m\pi}{L}\xi\right) = \\ &= \frac{2}{L} \sum_{m=1}^{\infty} e^{-\lambda_m(t-\tau)} \sin\left(\frac{m\pi}{L}x\right) \sin\left(\frac{m\pi}{L}\xi\right), \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

където

$$\lambda_m = \lambda_{222} + \left(\frac{m\pi}{L}\right)^2 D = \lambda_{222} \left[ 1 + \left(\frac{m\pi L_D}{L}\right)^2 \right]. \quad (\text{A.6})$$

Уравнения (A.4) и (A.5) позволяват да се намери решение за  $c(x, t)$ , описващо профила на концентрацията на радон в поликарбоната като функция на времето. Разгледани са следните случаи, важни за практическото прилагане на метода:

- Сорбция  $c_0(x) = 0$ :

– при режим А, т.е.  $c_{\text{out}}(0, t) = c_{\text{out}}(L, t) = c_{\text{out}} = \text{const}$

$$\begin{aligned} c_s^A(x, t) &= \frac{2DKc_{\text{out}}}{L} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{\frac{m\pi}{L} [1 - (-1)^m]}{\lambda_m} (1 - e^{-\lambda_m t}) \sin\left(\frac{m\pi}{L}x\right) = \\ &= \frac{4DKc_{\text{out}}}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1}} (1 - e^{-\lambda_{2k+1}t}) \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right). \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

– при режим В, т.е.  $c_{\text{out}}(0, t) = c_{\text{out}}(L, t) = c_{\text{out}} e^{-\lambda_{222}t}$

$$c_s^B(x, t) = \frac{4DKc_{\text{out}}}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1} - \lambda} (e^{-\lambda_{222}t} - e^{-\lambda_{2k+1}t}) \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right) \quad (\text{A.8})$$

- Десорбция при нулева външна обемна активност  $c_{\text{out}} = 0$ , след сорбция продължила  $T_{\text{exp}}$ , т.е.  $c_0(x) = c_s(x, T_{\text{exp}})$ :

– при режим на сорбция А:

$$c_d^A(x, t') = \frac{4DKc_{\text{out}}}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1}} (1 - e^{-\lambda_{2k+1}T}) e^{-\lambda_{2k+1}t'} \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right) \quad (\text{A.9})$$

– при режим на сорбция В:

$$c_d^B(x, t') = \frac{4DKc_{\text{out}}}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1} - \lambda_{222}} (e^{-\lambda_{222}T} - e^{-\lambda_{2k+1}T}) e^{-\lambda_{2k+1}t'} \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{L}x\right) \quad (\text{A.10})$$

Трябва да се отбележи, че в горните две уравнения времето  $t'$  се отчита от началото на десорбцията, а не от началото на сорбцията.

Активността на радона като функция на времето се намира чрез интегриране по обема на целия поликарбонат:

$$A(t) = \lambda_{222} \int_V c(V, t) dV = \lambda_{222} S \int_0^L c(x, t) dx. \quad (\text{A.11})$$

За горните случаи са олучени следните решения за  $A(t)$ :

• Сорбция:

– при режим А

$$A_s^A(t) = \frac{8KA_{\text{out}}\lambda_{222}SL_D^2}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1 - e^{-\lambda_{2k+1}t}}{\lambda_{2k+1}}, \quad (\text{A.12})$$

където  $A_{\text{out}} = \lambda_{222}c_{\text{out}}$  е обемната активност на  $^{222}\text{Rn}$  във външната среда.

– при режим В

$$A_s^B(t) = \frac{8KA_{\text{out}}\lambda_{222}SL_D^2}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{e^{-\lambda t} - e^{-\lambda_{2k+1}t}}{\lambda_{2k+1} - \lambda}. \quad (\text{A.13})$$

• Десорбция при нулева външна обемна активност, след сорбция продължила  $T_{\text{exp}}$ :

– при режим на сорбция А:

$$A_d^A(t') = \frac{8KA_{\text{out}}\lambda_{222}SL_D^2}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1 - e^{-\lambda_{2k+1}T_{\text{exp}}}}{\lambda_{2k+1}} e^{-\lambda_{2k+1}t'}. \quad (\text{A.14})$$

– при режим на сорбция В:

$$A_d^B(t') = \frac{8KA_{\text{out}}\lambda_{222}SL_D^2}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{e^{-\lambda T_{\text{exp}}} - e^{-\lambda_{2k+1}T_{\text{exp}}}}{\lambda_{2k+1} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1}t'}. \quad (\text{A.15})$$

Уравнения (A.12-A.15) могат да бъдат използвани за експериментално определяне на  $L_D$  и  $K$  чрез бета/гама-измервания на облъчени поликарбонатни образци [74, 122, 150]. Стойностите на  $K$  и  $L_D$  могат да бъдат оценени и чрез ецване на трекове в облъчени

поликарбонатни пластинки [75]. За определяне на  $L_D$  дори не е необходимо да е известна обемната активност на радона, при която са облъчени поликарбонатите. Разтворимостта на  $^{222}\text{Rn}$  от вода в поликарбонат  $K_{\text{water}}$  е определена за температура  $25^\circ\text{C}$  и е равна на 100 [122]. В Таблица А.1 са представени резултати за разтворимостта на  $^{222}\text{Rn}$  от въздух в поликарбонат  $K_{\text{air}}$  и дължината на дифузия на  $^{222}\text{Rn}$  в поликарбоната  $L_D$  при различни температури. В литература [75], на базата на експериментални резултати, са получени полиноми, описващи зависимостта на  $K_{\text{air}}$  и  $L_D$  от температурата в интервала  $5 \div 38^\circ\text{C}$ . Те са:

$$K_{\text{air}}(T) = -0.0239T^2 + 0.9129T + 17.547, \quad (\text{A.16})$$

$$L_D(T) = 0.0554T^2 - 0.7151T + 44.413, \quad (\text{A.17})$$

като и в двата израза температурата е в градуси по Целзий.

Temperature	$L_D, \mu\text{m}$	$K_{\text{air}}$
$5^\circ\text{C}$	$42.2 \pm 1.6$	$21.5 \pm 4.3$
$19.5^\circ\text{C}$	$51.7 \pm 0.8$	$26.4 \pm 2.5$
$23.5^\circ\text{C}$	$58.0 \pm 0.5$	$25.7 \pm 1.5$
$38^\circ\text{C}$	$97.2 \pm 2.5$	$17.8 \pm 1.2$

Таблица А.1: Разтворимост на  $^{222}\text{Rn}$  от въздух в поликарбонат  $K_{\text{air}}$  и дължина на дифузия на  $^{222}\text{Rn}$  в поликарбонат  $L_D$ , определени чрез ецване на трекове в компакт-дискове, облъчени при различни температури. Подходът за определянето им е базиран на представения тук теоретичен модел за сорбция и десорбция и на моделиране на треквите свойства на поликарбонатния материал на дисковете и е представен в литература [75].

След като стойностите на  $L_D$  и  $K$  за дадена температура са определени, уравнения (А.12-А.15) могат да бъдат прилагани за оптимизиране на измерванията, както и за корекции на получените резултати при различаващи се условия. За да може следствията от теоретичния модел да бъдат изследвани и прилагани, е разработен компютърен код, който числено пресмята както изразите (А.12-А.15), така и профилите на концентрацията на благородния газ в поликарбоната [119].

Пример за оптимизиране на измерванията, приложен в настоящата работа, е определянето на оптимално време за облъчване на поликарбонатни образци във вода чрез определяне на момента, в който  $A_s^B$  става максимална (част IV.1.1). Освен това, при методите, включващи ецване на трекове от алфа-частици, функцията  $A_d(t)$  е използвана за определяне на времето, необходимо за дегазиране на детекторите. То е определено като времето, за което  $A_d(t)$  намалява 100 пъти (част III.3, Фиг. III.14). Други възможности за

оптимизиране на поликарбонатния метод (например чрез избор на образци с оптимална дебелина) са представени в литература [119], както за случаи на измерване на  $^{222}\text{Rn}$ , така и на  $^{85}\text{Kr}$ . Пример за корекция за разлика в условията на облъчване и измерване е разгледан по-долу.

## А.2 Корекция за разлика в условията на облъчване и измерване при бета/гама-измервания на поликарбонатните

Даденият тук пример е за случай на поликарбонатни пластинки, облъчвани във вода с цел измерване на  $^{222}\text{Rn}$ . На същия принцип, се прилага и корекцията в случай на измервания във въздух или на измервания на други благородни газове.

В част IV.1.2 са определени калибровъчни коефициенти, приложими за измервания на  $^{222}\text{Rn}$  във води чрез абсорбция в поликарбонати и бета/гама измервания. Те са получени за пластинки с дебелина  $L = 300 \mu\text{m}$ , облъчени 48 часа при режим В и температура около  $T = 20^\circ\text{C}$ , като измерването е проведено в интервала от 4 до 30 часа след облъчването и е с продължителност не по-голяма от няколко часа. В случай, че условията се различават от гореописаните, калибровъчният коефициент трябва да се коригира. Принципът на корекцията може да се покаже, като се има предвид следното представяне на  $CF^w$  (в което участват величините, които определят стойността му):

$$CF^w = \frac{\epsilon(T_{\text{сорп}}, T_{\text{десорп}}, L, T) A_d(T_{\text{сорп}}, T_{\text{десорп}}, L, T)}{A_V^w}, \quad (\text{A.18})$$

където  $\epsilon$  е ефективността на детекторната система при измерването (която освен от горните параметри зависи и от геометрията на измерването), а  $A_d$  е активността на радона в поликарбоната (съответно на всеки от ДПР, чието лъчение се регистрира). Тъй като по време на измерването, радонът десорбира от поликарбоната се използва израза за активността при десорбция. При условията, при които е направено калибрирането  $\epsilon(T_{\text{сорп}}, T_{\text{десорп}}, L, T) = \epsilon(L, T)$  и  $A_d(T_{\text{сорп}}, T_{\text{десорп}}, L, T) = A_d(T_{\text{сорп}}, 0, L, T)$ . Нека определенният калибровъчен коефициент е означен с  $CF_1^w$ . Тогава коефициентът валиден за други условия  $CF_2^w$  ще е равен на:

$$CF_2^w = \frac{\epsilon_2(T_{\text{сорп}}, T_{\text{десорп}}, L, T)}{\epsilon_1(L, T)} \frac{A_{1d}(T_{\text{сорп}}, 0, L, T)}{A_{2d}(T_{\text{сорп}}, T_{\text{десорп}}, L, T)} CF_1^w. \quad (\text{A.19})$$

В случай, че измерването е с продължителност по-голяма от няколко часа вместо  $\epsilon_2$  и  $A_{2d}$  трябва да се използва средната им стойност, определена чрез интегриране по  $T_{\text{десорп}}$ . В случай на бета-измервания,  $\epsilon$  зависи от профила на активността в пластинката и стойностите на  $\epsilon_1$  и  $\epsilon_2$  може значително да се различават дори при една и съща гео-

метрия на измерването. Подробно изследване на зависимостта на  $\epsilon$  от горните параметри е направено в литература [119], като е показано, че  $\epsilon$  може да се оцени чрез разработен за целта код, базиран на Монте Карло моделиране. В случай на гама-спектрометрични измервания на тънки пластинки може да се приеме, че ефективността  $\epsilon$  не зависи от профила на активността в пластинката. Тогава при **гама-спектрометрични измервания на тънки пластинки**, проведени при една и съща геометрия, изразът А.19 приема вида:

$$CF_2^w = \frac{A_{1d}(T_{\text{sorp}}, T_{\text{desorp}}, L, T)}{A_{2d}(T_{\text{sorp}}, 0, L, T)} CF_1^w, \quad (\text{A.20})$$

като  $A_{1d}$  и  $A_{2d}$  се пресмятат чрез уравнение (А.14) или (А.15).

Когато корекцията се прилага за калибриране и измерване при една и съща температура, не е необходимо да се познава стойността на  $K_{\text{water}}$ , а само на  $L_D$  при тази температура. Стойността на  $L_D$  при температури в интервала  $5 \div 38^\circ\text{C}$  може да се пресметне от уравнение А.17.

### А.3 Следствие от теоретичния модел за случая на измервания на $^{222}\text{Rn}$ чрез ецване на трекове от алфа-частици в поликарбонати

Както е показано в работата, измерванията на  $^{222}\text{Rn}$  чрез ецване на трекове от алфа-частици в поликарбонати се базират на факта, че плътността на трековете, формирани на определена дълбочина е пропорционална на интегрираната по времето обемна активност на радона във външната среда. Коефициентът на пропорционалност е всъщност калибровъчния фактор  $CF$ . Важно е да се покаже, че  $CF$  е един и същ дори при кратки облъчвания, при които характерните времена за преходните процеси са сравними с цялото време на облъчване. Експерименталните резултати от калибриране на дискове (част III.3) и облъчване на поликарбонати във вода (част IV.2.2) дават косвено доказателство за това. В тази част е представено доказателство, базирано на теоретичния модел. Показано, че при режими на облъчване А и В,  $CF$  не зависи от продължителността на облъчването. Това разбира се е вярно в рамките на допусканията, приети в модела. Едно от тези допускания е, че от самото начало на облъчването е налице скок на обемната активност на радона на границата поликарбонат/среда. Друго направено допускане е, че  $L_D$  е едно и също по време на сорбцията и на десорбцията, т.е. че температурата е една и съща.

Нека на дълбочина  $d$  се формират трекове от алфа-частици, излъчени в поликарбоната от произволна дълбочина  $x$ . Плътността на тези трекове  $n(x \rightarrow d)$  е пропорционална на интегрираната по времето обемна активност на радона на дълбочина  $x$  -  $I(x)$ .

За облъчване с продължителност  $T_{\text{exp}}$ ,  $I(x)$  се състои от две компоненти, едната описваща интеграла на активността по време на облъчването, а другата след него:

$$\begin{aligned} I(x) &= \lambda_{222} \left( \int_0^{T_{\text{exp}}} c_s(x, t) dt + \int_{T_{\text{exp}}}^{\infty} c_d(x, t - T_{\text{exp}}) dt \right) \\ &= \lambda_{222} \left( \int_0^{T_{\text{exp}}} c_s(x, t) dt + \int_0^{\infty} c_d(x, t') dt' \right). \end{aligned} \quad (\text{A.21})$$

Тогава от уравнения (A.7) и (A.9) следва, че при облъчване при режим А,  $I(x)$ , разделена на интегрираната по времето на облъчване обемна активност ( $I_{\text{out}} = A_{\text{out}} T_{\text{exp}}$ ) се дава с:

$$\begin{aligned} \frac{I(x)}{I_{\text{out}}} &= \frac{1}{A_{\text{out}} T_{\text{exp}}} \frac{4A_{\text{out}} L_D^2}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1}} \sin \left( \frac{(2k+1)\pi}{L} x \right) * \\ &* \left( T_{\text{exp}} - \frac{e^0 - e^{-\lambda_{2k+1} T_{\text{exp}}}}{\lambda_{2k+1}} + \frac{e^0 - e^{-\lambda_{2k+1} T_{\text{exp}}}}{\lambda_{2k+1}} (e^0 - e^{\infty}) \right) = \\ &= \frac{4L_D^2}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1}} \sin \left( \frac{(2k+1)\pi}{L} x \right). \end{aligned} \quad (\text{A.22})$$

От уравнения (A.8) и (A.10) следва, че при облъчване при режим В,  $I(x)$ , разделена на интегрираната по времето на облъчване обемна активност ( $I_{\text{out}} = \frac{A_{\text{out}}}{\lambda_{222}} (1 - e^{-\lambda_{222} T_{\text{exp}}})$ ) се дава с:

$$\begin{aligned} \frac{I(x)}{I_{\text{out}}} &= \frac{\lambda_{222}}{A_{\text{out}} (1 - e^{-\lambda_{222} T_{\text{exp}}})} \frac{4A_{\text{out}} L_D^2}{L} * \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1} - \lambda_{222}} \sin \left( \frac{(2k+1)\pi}{L} x \right) * \\ &* \left( \frac{e^0 - e^{-\lambda_{222} T_{\text{exp}}}}{\lambda_{222}} - \frac{e^0 - e^{-\lambda_{2k+1} T_{\text{exp}}}}{\lambda_{2k+1}} + \frac{e^{-\lambda_{222} T_{\text{exp}}} - e^{-\lambda_{2k+1} T_{\text{exp}}}}{\lambda_{2k+1}} (e^0 - e^{\infty}) \right) = \\ &= \frac{\lambda_{222}}{A_{\text{out}} (1 - e^{-\lambda_{222} T_{\text{exp}}})} \frac{4A_{\text{out}} L_D^2}{L} * \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1} - \lambda_{222}} \sin \left( \frac{(2k+1)\pi}{L} x \right) * \\ &* \left( \frac{(e^0 - e^{-\lambda_{222} T_{\text{exp}}}) (\lambda_{2k+1} - \lambda_{222})}{\lambda_{2k+1} \lambda_{222}} \right) = \\ &= \frac{4L_D^2}{L} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\frac{(2k+1)\pi}{L}}{\lambda_{2k+1}} \sin \left( \frac{(2k+1)\pi}{L} x \right). \end{aligned} \quad (\text{A.23})$$

Тъй като дълбочината  $x$  бе избрана произволно (от множеството на всички дълбочини, от които излъчените алфа-частици могат да формират трекове на  $d$ ), то може

да се обобщи, че  $CF(d)$  не зависи от времето на облъчване и е един и същ при облъчване в режим А и в режим В. Освен това, същият резултат ще се получи и при облъчване при външна обемна активност, променяща се във времето по следната функция  $c_{\text{out}}(t) = c_{\text{out}}(t) (1 - e^{-\lambda_{222}t})$ . Този случай може да се разглежда като „А-В“. Той реално се реализира при облъчвания във вода, съдържаща  $^{226}\text{Ra}$ , когато началната обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  е нула (част IV.2.3).

Направеният извод ни позволява при измервания на  $^{222}\text{Rn}$  чрез ецване на трекове от алфа-частици в поликарбонати да не разглеждаме преходните процеси. Тогава може да се счита, че облъчването е много по-дълго и е проведено при стационарни условия. Профилът на обемната активност в поликарбонатите при стационарни условия може да се използва за получаване на дълбочината зависимост на  $CF$  (част IV.2.1). За концентрацията на радона в поликарбоната  $c(x)$  е валидно следното стационарно уравнение:

$$D \frac{d^2 c}{dx^2} - \lambda_{222} c = 0. \quad (\text{A.24})$$

Граничните условия, описващи абсорбция от двете страни на детектор с дебелина  $L$  са  $c(0) = c(L) = K c_{\text{out}}$ . Решението на уравнение (A.24) се дава от:

$$c(x) = \frac{K c_{\text{out}}}{\cosh\left(\frac{L}{2L_D}\right)} \cosh\left(\frac{x - \frac{L}{2}}{L_D}\right). \quad (\text{A.25})$$

От горния израз лесно може да бъде получен профилът на обемната активност, като се има предвид, че  $A_V(x) = \lambda_{222} c(x)$ . Може да се приеме, че ДПР в поликарбоната са в равновесие с радона. Тъй като ДПР са метали и металоиди, се счита, че те остават на мястото на образуването си (откатния пробег на ядрата им може да се пренебрегне). Тогава профила на обемната активност на всеки от трите алфа-излъчващи нуклида ( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$ ) в поликарбоната се дава с:

$$A_V(x) = \frac{K A_{V\text{out}}}{\cosh\left(\frac{L}{2L_D}\right)} \cosh\left(\frac{x - \frac{L}{2}}{L_D}\right). \quad (\text{A.26})$$

## Приложение Б. Оценка на критичното ниво и минималната детектеруема активност.

В настоящата част са изведени изразите за оценка на критичното ниво и минималната детектеруема активност (означена с  $MDA$ ), при прилагане на предложените от нас методи

за измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води чрез абсорбция в поликарбонати. Използван е статистически подход, предложен в литература [151]. Представените тук извеждания са предложени в литература [152], като изразите получени там могат директно да бъдат приложени при експресния метод за измерване на радон във води. Изразите за оценка на критичното ниво и МДА при трековия метод са изведени по аналогия със случая на общо бета-броене, разгледан в [152].

**Критичното ниво** (означено с  $L_c$ ) маркира границата, над която вероятността  $\alpha$  да допуснем грешка от I-ви род става приемливо ниска – Фиг.Б.1. В случай на измервания на активност, грешка от I-ви род означава да се декларира наличие на активност в дадена проба<sup>1</sup>, когато всъщност такава няма. Тази грешка се допуска, когато стойността на чистия сигнал (сигналът, получен при измерване на пробата, минус фоновия сигнал) е по-голям от нула. В действителност, поради статистическия характер на процесите на излъчване и регистриране на йонизиращи лъчения, както чистият, така и фоновият сигнал флукутират. Обикновено при измерванията на активност сигналът, регистриран при едни и същи условия, е разпределен Гаусово. Ако в пробата няма активност, средната стойност на разпределението ще е 0 и 50% от получените стойности на чистия сигнал ще са по-големи от нула. В интервала  $[-\infty, \sigma_{net}]$  ще лежат 84 % от стойностите, като със  $\sigma_{net}$  е означена абсолютната статистическа неопределеност на чистия сигнал. Разглежданият интервал е едностранен доверителен интервал. Едностранният доверителен интервал се записва обобщено като  $[-\infty, q_\alpha \sigma_{net}]$ , където  $\alpha$  е вероятността търсената величина да се намира извън интервала, а  $q_\alpha$  е съответстващият на  $\alpha$  коефициент за едностранен доверителен интервал ( $q_\alpha = 1$  за  $\alpha = 16$  %,  $q_\alpha = 1,65$  за  $\alpha = 5$  %,  $q_\alpha = 2,33$  за  $\alpha = 1$  %). Тогава от дефиницията на критичното ниво следва, че:

$$L_c = q_\alpha \sigma_{net}. \quad (\text{Б.1})$$

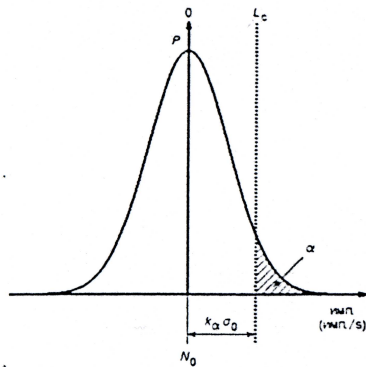
Конкретният вид на  $\sigma_{net}$  зависи от конкретния тип измерване. Критичното ниво се използва само като ниво на решение, т.е. като база за проверка на статистическата достоверност на чистия брой импулси:

- Ако чистият сигнал не надвишава  $L_c$ , то с достатъчна степен на достоверност можем да твърдим, че сигналът измерен от пробата е статистически неразличим от фоновия.
- Ако чистият сигнал надвишава  $L_c$ , то с достатъчна степен на достоверност можем да декларираме наличие на активност в пробата.

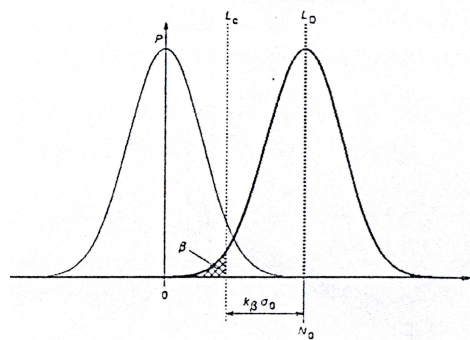
---

<sup>1</sup>Думата проба е използвана за удобство, но вместо проба може да се има предвид измерване в дадена среда, на дадена повърхност и т.н.





Фигура Б.1: Илюстрация на смисъла на критичното ниво. На абцисата е чистия сигнал, а на ординатата плътността на вероятността. Площта на щрихованото поле е  $\alpha$  % от площта на разпределението. Фигурата е съгласно литература [151].



Фигура Б.2: Илюстрация на смисъла на нивото на детектиране. На абцисата е чистия сигнал, а на ординатата плътността на вероятността. Площта на щрихованото поле е  $\beta$  % от площта на разпределението. Фигурата е съгласно литература [151].

За въвеждане на *MDA*, се дефинира **нивото на детектиране** (означено с  $L_d$ ). Нивото на детектиране представлява предварителна оценка на тази стойност на истинския чист сигнал, която съответства на минимална активност<sup>2</sup> в пробата, такава че по-късно при реално измерване вероятността регистрираният чист сигнал да не надхвърля  $L_c$  да бъде приемливо ниска – Фиг.Б.2. Нека  $\beta$  е зададената от нас вероятност, търсената величина да не надхвърля  $L_c$ , а  $q_\beta$  е съответстващият на  $\beta$  коефициент за едностранен доверителен интервал. Тогава, от дефиницията следва, че:

$$L_d = L_c + q_\beta \sigma_{net}. \quad (\text{Б.2})$$

Нека **минималната детектеруема активност** се дефинира като предварителна оценка за минималната активност, която трябва да има в пробата, така че по-късно при реално измерване вероятността регистрираният чист сигнал да не надхвърля  $L_c$  да бъде  $\beta$ . Тоест *MDA* е активността, която води до сигнал равен на  $L_d$  и:

$$MDA = \frac{L_d}{k}, \quad (\text{Б.3})$$

където  $k$  е коефициент, свързващ сигнала, регистриран при дадените условия на измерва-

<sup>2</sup>Тук активност се използва в най-общ смисъл и в конкретните случаи може да бъде заместена с обемна активност, повърхностна активност, интегрирана по времето активност и т.н.

не, с активността в пробата. Така дефинираната *MDA* дава само предварителна оценка. Трябва да се има предвид, че терминът минимална детектеруема активност се използва и в друг смисъл - когато при измерване на една проба сигналът е по-малък от  $L_c$  може да се даде оценка (с определена вероятност) за максималната активност, която може да има в пробата. Важна разлика е, че втората дефиниция се отнася за вече измерени проби. В настоящата дисертация *MDA* е използвана само в първия смисъл, т.е. като предварителна оценка за възможностите на разглежданите методи при дадените условия.

## Б.1 Общи бета-измервания

Използвани са следните означения:

- $c$  [imp.s<sup>-1</sup>] – скорост на броене, с индекси: gross - пълна, некоригирана с фона; bg - фонова; net – чиста, коригирана с фона;
- $t$  [s] – продължителност на измерването;
- $\sigma_c$  [imp.s<sup>-1</sup>] – статистическа неопределеност на скоростта на броене. Когато е определена чрез директно измерване  $\sigma_c = \sqrt{\frac{c}{t}}$ . При оценката и се използва, че абсолютната неопределеност на броя импулси  $C$ , регистрирани за един и същ интервал, е равна на  $\sqrt{C}$ .

Оценката на  $L_c$  се прави при предположение, че в пробата няма активност. Тогава:

$$c_{\text{net}} = c_{\text{gross}} - c_{\text{bg}} = 0. \quad (\text{Б.4})$$

$$\sigma_{c_{\text{net}}} = \sqrt{\sigma_{c_{\text{gross}}}^2 + \sigma_{c_{\text{bg}}}^2} = \sqrt{\frac{c_{\text{gross}}}{t_{\text{gross}}} + \frac{c_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}}} = \sqrt{\frac{c_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}} \left(1 + \frac{t_{\text{bg}}}{t_{\text{gross}}}\right)}. \quad (\text{Б.5})$$

$$L_c = q_\alpha \sqrt{\frac{c_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}} \left(1 + \frac{t_{\text{bg}}}{t_{\text{gross}}}\right)}. \quad (\text{Б.6})$$

Нивото на детектиране се определя, когато:

$$c_{\text{net}} = c_{\text{gross}} - c_{\text{bg}} = L_d. \quad (\text{Б.7})$$

Следователно:

$$\sigma_{c_{\text{net}}} = \sqrt{\frac{c_{\text{gross}}}{t_{\text{gross}}} + \frac{c_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}}} = \sqrt{\frac{c_{\text{bg}} + L_d}{t_{\text{gross}}} + \frac{c_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}}} = \sqrt{\frac{c_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}} \left(1 + \frac{t_{\text{bg}}}{t_{\text{gross}}}\right)}. \quad (\text{Б.8})$$

$$L_d = L_c + q_\beta \sigma_{c_{\text{net}}} = L_c + q_\beta \sqrt{\frac{L_d}{t_{\text{gross}}} + \frac{c_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}} \left(1 + \frac{t_{\text{bg}}}{t_{\text{gross}}}\right)} = L_c + q_\beta \sqrt{\frac{L_d}{t_{\text{gross}}} + \frac{L_c^2}{q_\alpha^2}}. \quad (\text{Б.9})$$

Решението на уравнение Б.9 при  $q_\alpha = q_\beta = q$  е:

$$L_d = 2L_c + \frac{q^2}{t_{\text{bg}}}. \quad (\text{Б.10})$$

При експресния метод за измерване на радон във води (разгледан в част IV.1.2) се оценява минималната детектуема обемна активност на  $^{222}\text{Rn}$  във водата *MDAC*, която се дава с уравнение Б.3, като  $k = CF^w$ .

## Б.2 Гама-спектрометрични измервания

Направените оценки са за случая, в който не само в спектъра на пробата, но и в спектъра на фона се наблюдават фотопикове в интересуващите ни енергийни области. При измерването на радон и ДПР това е така, тъй като тези естествени радионуклиди се съдържат във въздуха. Използвани са означенията:

- $c(E_i)$  [imp.s<sup>-1</sup>] – скорост на броене в чистата площ на фотопика с енергия  $E_i$ , с индекси: gross - пълна, некоригирана с фона; bg - фонова; net – чиста, коригирана с фона;
- $t$  [s] – продължителност на измерването;
- $\sigma_c$  [imp.s<sup>-1</sup>] – статистическа неопределеност на скоростта на броене. Когато е определена чрез директно измерване  $\sigma_c = \sqrt{\frac{c}{t}}$ . При оценката и се използва, че абсолютната неопределеност на броя импулси  $C$ , регистрирани за един и същ интервал, е равна на  $\sqrt{C}$ ;
- $f(E_i)$  [imp.s<sup>-1</sup>] – скорост на броене в подложката на фотопика с енергия  $E_i$ , със същите индекси. Съответно статистическата и неопределеност при директно измерване се оценява като  $\sigma_f = \sqrt{\frac{f}{t}}$ . При направените тук разглеждания се приема, че скоростта на броене в непрекъснатото разпределение под фотопика се оценява само по каналите под фотопика.

Критичното ниво  $L_c$  се оценява при:

$$c_{\text{net}}(E_i) = c_{\text{gross}}(E_i) - c_{\text{bg}}(E_i) = 0. \quad (\text{Б.11})$$

В действителност  $c_{\text{gross}}(E_i)$  и  $c_{\text{bg}}(E_i)$  се пресмятат като от пълната скорост на броене във фотопика се извади скоростта на броене в подложката, тоест:

$$c_{\text{bg}}(E_i) = (c_{\text{bg}}(E_i) + f_{\text{bg}}(E_i)) - f_{\text{bg}}(E_i) = 0, \quad (\text{B.12})$$

$$c_{\text{gross}}(E_i) = (c_{\text{gross}}(E_i) + f_{\text{gross}}(E_i)) - f_{\text{gross}}(E_i) = 0. \quad (\text{B.13})$$

Тогава:

$$\sigma_{c_{\text{bg}}(E_i)}^2 = \sigma_{c_{\text{bg}}(E_i)+f_{\text{bg}}(E_i)}^2 + \sigma_{f_{\text{bg}}(E_i)}^2 = \frac{c_{\text{bg}}(E_i) + f_{\text{bg}}(E_i)}{t_{\text{bg}}} + \frac{f_{\text{bg}}(E_i)}{t_{\text{bg}}}, \quad (\text{B.14})$$

$$\begin{aligned} \sigma_{c_{\text{gross}}(E_i)}^2 &= \sigma_{c_{\text{gross}}(E_i)+f_{\text{gross}}(E_i)}^2 + \sigma_{f_{\text{gross}}(E_i)}^2 = \frac{c_{\text{gross}}(E_i) + f_{\text{gross}}(E_i)}{t_{\text{gross}}} + \frac{f_{\text{gross}}(E_i)}{t_{\text{gross}}} = \\ &= \frac{c_{\text{bg}}(E_i) + f_{\text{gross}}(E_i)}{t_{\text{gross}}} + \frac{f_{\text{gross}}(E_i)}{t_{\text{gross}}}. \end{aligned} \quad (\text{B.15})$$

Следователно:

$$\sigma_{c_{\text{net}}(E_i)}^2 = \sigma_{c_{\text{gross}}(E_i)}^2 + \sigma_{c_{\text{bg}}(E_i)}^2 = \frac{c_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}} \left( 1 + \frac{t_{\text{bg}}}{t_{\text{gross}}} \right) + 2 \left( \frac{f_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}} + \frac{f_{\text{gross}}}{t_{\text{gross}}} \right), \quad (\text{B.16})$$

$$L_c = q_\alpha \sigma_{c_{\text{net}}(E_i)} = q_\alpha \sqrt{\frac{c_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}} \left( 1 + \frac{t_{\text{bg}}}{t_{\text{gross}}} \right) + 2 \left( \frac{f_{\text{bg}}}{t_{\text{bg}}} + \frac{f_{\text{gross}}}{t_{\text{gross}}} \right)}. \quad (\text{B.17})$$

Изразът Б.10, даващ връзка между  $L_d$  и  $L_c$  при  $q_\alpha = q_\beta = q$  е валиден и при гама-спектрометрични измервания. Както и при бета-измерванията на поликарбонати, облъчени във води, търсената величина е обемната активност на радона във водата. Тогава *MDAC* се оценява за конкретна енергия  $E_i$  чрез уравнение Б.3, като в случая  $k = CF^w(E_i)$ .

### Б.3 Измерване чрез ецване на трекове от алфа-частици в поликарбонати

Този случай се разглежда аналогично на случая на общо бета-броене. Използвани са следните означения:

- $n$  [ $\text{tr.cm}^{-2}$ ] (аналог на  $c$ ) – плътност на трековете, с индекси: gross - пълна, некоригирана с фона; bg - фонова; net – чиста, коригирана с фона;

- $S$  [cm<sup>2</sup>] (аналог на  $t$ )– площ на полето, за което се определя плътността на трековете;
- $\sigma_n$  [tr.cm<sup>-2</sup>] – статистическа неопределеност на плътността на трековете. Когато е определена директно  $\sigma_n = \sqrt{\frac{n}{S}}$ . При оценката и се използва, че абсолютната неопределеност на броя трекове  $N$ , върху дадено поле е равна на  $\sqrt{N}$ .

Оценката на  $L_c$  се прави при предположение, че в пробата няма активност. Тогава:

$$n_{\text{net}} = n_{\text{gross}} - n_{\text{bg}} = 0. \quad (\text{Б.18})$$

$$\sigma_{n_{\text{net}}} = \sqrt{\frac{n_{\text{bg}}}{S_{\text{bg}}} \left( 1 + \frac{S_{\text{bg}}}{S_{\text{gross}}} \right)}. \quad (\text{Б.19})$$

$$L_c = q_\alpha \sqrt{\frac{n_{\text{bg}}}{S_{\text{bg}}} \left( 1 + \frac{S_{\text{bg}}}{S_{\text{gross}}} \right)}. \quad (\text{Б.20})$$

При  $q_\alpha = q_\beta = q$ , нивото на детектиране по аналогия с Б.10 е:

$$L_d = 2L_c + \frac{q^2}{S_{\text{bg}}}. \quad (\text{Б.21})$$

При прилагане на трековия метод за измерване на радон сигналът е пропорционален на интегрираната по времето обемна активност, а търсената величина е средната обемна активност на <sup>222</sup>Rn. Тогава минималната детектуема обемна активност  $MDAC$  за определена дълбочина на ецване  $d$  се оценява чрез уравнение Б.3, като  $k = T_{\text{exp}}CF(d)$ . Горните оценки не могат да се приложат директно, ако дълбочината на ецване на фоновия детектор е нехомогенна - тогава неопределеността на  $\sigma_{n_{\text{net}}}$  трябва да се разшири и да включва не само статистическа компонента. Освен това, горните оценки за критичното ниво и  $MDAC$  се прилагат, когато предварително е определена фоновата плътност в детекторите чрез ецване на необлъчени парчета. Именно така се прилага поликарбонатния метод при измервания във води.



# Библиография

- [1] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Report to the General Assembly, 2006*. United Nations, United Nations Office at Vienna, Austria, 2009.
- [2] World Health Organization. *WHO handbook on indoor radon: a public health perspective*. WHO press, Geneva, Switzerland, 2009.
- [3] Environmental Protection Agency. *EPA assessment of risks from radon in homes*. Office of radiation and indoor air, United States Environmental Protection Agency., Washington, DC, USA, 2003.
- [4] Committee on Health Risks of Exposure to Radon (BEIR VI). National Research Council. *Health effects of exposure to radon*. National Academy Press, Washington, DC, USA, 1999.
- [5] Д. С. Пресиянов. *Кумулативни измервания на дъщерни продукти на  $^{222}\text{Rn}$  и на външното бета облъчване от  $^{234\text{m}}\text{Pa}$* . Дисертация за присъждане на научната степен кандидат на физическите науки, София, 1992.
- [6] S. Darby et al. Residential radon and lung cancer: detailed results of a collaborative analysis of individual data on 7148 subjects with lung cancer and 14208 subjects without lung cancer from 13 epidemiologic studies in Europe. *Scand. J. Work Environ. Health*, 32(Suppl1):1–83, 2006.
- [7] J.P. McLaughlin, K. Kelleher, H. Jimenez-Napoles, and L. Leon-Vintro. Retrospective radon assessment in a high radon dwelling in Ireland. *Int. Congr. Ser.*, 1276:399–400, 2005.
- [8] Z. Daraktchieva and J. Miles. Radon, the lognormal distribution and deviation from it. In *10th International workshop on the geological aspects of radon risk mapping.*, Prague, Czech Republic, 2010.
- [9] J.H. Lubin et al. Adjusting lung cancer risks for temporal and spatial variations in radon concentration in dwellings in Gansu Province. *China Radiat. Res.*, 163(5):571–579, 2005.

- [10] Z. Zhang, B. Smith, D.J. Steck, Q. Guo, and R.W. Field. Variation in yearly residential radon concentrations in the Upper Midwest. *Health Phys.*, 93(4):288–297, 2007.
- [11] U. Baverstam and G-A. Swedjemark. Where are the errors when we estimate radon exposure in retrospect? *Radiat. Prot. Dosimetry*, 36(2/4):107–112, 1991.
- [12] J.H. Lubin, Jr. Boice, and J.D. Samet. Errors in exposure assessment, statistical power and the interpretation of residential radon studies. *Radiat. Res.*, 144:329–341, 1995.
- [13] F. Bochicchio. Radon epidemiology and nuclear track detectors: Methods, results and perspectives. *Radiat. Meas.*, 40:177–190, 2005.
- [14] 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.
- [15] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Van Deynse, A. Poffijn, and G. Meesen. Indoor radon detected by compact disks. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 457:665–666, 2001.
- [16] 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.
- [17] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Poffijn, A. Van Deynse, and G. Meesen. Integrated measurements of  $^{222}\text{Rn}$  by absorption in Makrofol. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 516:203–208, 2004.
- [18] M.M. Be, V. Chiste, and C. Dulieu, editors. *Periodes radioactives. Table de valeurs recommandees.* Commissariat a l’energie atomique. Laboratoire national Henri Becquerel., 2006. Свободно достъпна на <http://www.nucleide.org/NucData.htm> на френски и английски.
- [19] J.H. Harley. Sampling and measurement of airborne daughter products of radon. *Health Phys.*, 38(6):1068–1074, 1980. Reprinted - originally published 1953.
- [20] National Research Council. *Panel on dosimetric assumptions affecting the application of radon risk estimates. Comparative dosimetry of radon in mines and homes.* National Academy Press, Washington, DC, USA, 1991.
- [21] A.C. James. *Internal radiation dosimetry.*, chapter Dosimetry of inhaled radon and thoron progeny. Medical Physics Publishers, Madison, WI, USA, 1994.



- [22] Н.В. Рябов и К.Н. Стась К.П. Марков. Экспресс-метод оценки радиационной опасности, связанной с наличием в воздухе дочерних продуктов радона. *Атомная энергия*, 12(4):315–319, 1962.
- [23] P. Kritidis, I. Uzunov, and L. Minev. Precision alpha-counting method for determination of radon daughters in air. *Nucl. Instrum. Methods, Sect. A*, 143:299–305, 1977.
- [24] D.S. Pressyanov, M.G. Guelev, and O.J. Pentchev. Integrated measurements of short-lived  $^{222}\text{Rn}$  progeny by rotating filters. *Health Phys.*, 64(5):522–527, 1993.
- [25] D.S. Pressyanov. Integrated measurements of  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  and  $^{214}\text{Bi}+^{214}\text{Po}$  in air under environmental concentrations. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 397:448–454, 1997.
- [26] International Commission on Radiological Protection. *International Commission on Radiological Protection statement on radon*. ICPR, 2009. Ref 00/902/09.
- [27] A.C. James. *Radon and its decay products. Occurance, properties and health effects.*, chapter A reconsideration of cells at risk and other key factors in radon daughter dosimetry. American Chemical Society, Washington, DC, USA, 1987.
- [28] H. Vanmarcke, A. Janssens, F. Raes, A. Proffijn, P. Berkvens, and R. Van Dingenen. *Radon and its decay products. Occurance, properties and health effects.*, chapter The behavior of radon daughters in the domestic environment. American Chemical Society, Washington, DC, USA, 1987.
- [29] B. Grosche, M. Kreuzer, M. Kreisheimer, M. Schnelzer, and A. Tschense. Lung cancer risk among German male uranium miners: a cohort study, 1946-1998. *Br. J. Cancer*, 95:1280–1287, 2006.
- [30] D.J. Steck, M.C.R. Alavanja, R.W. Field, M.A. Parkhurst, D.J. Bates, and J.A. Mahaffey.  $^{210}\text{Po}$  implanted in glass surfaces by long term exposure to indoor radon. *Health Phys.*, 83(2):261–271, 2002.
- [31] D.J. Steck and R.W. Field. The use of track registration detectors to reconstruct contemporary and historical airborne radon  $^{222}\text{Rn}$  and radon progeny concentrations for a Radon-Lung Cancer Epidemiologic Study. *Radiat. Meas.*, 31:401–406, 1999.
- [32] R. Falk, K. Almren, and I. Ostergren. Experience from retrospective radon exposure estimations for individuals in a radon epidemiological study using solid-state nuclear track detectors. *Sci. Total Environ.*, 272:61–66, 2001.

- [33] J.A. Mahaffey, M.C.R. Alvanja, M.A. Parkhurst, E. Berger, and R.C. Brownson. Estimation of radon exposure history for analysis of a residential epidemiology study. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 13(5):571–579, 1999.
- [34] C. Samuelsson. Plate-out and implantation of  $^{222}\text{Rn}$  decay products in dwellings. *Environ. Int.*, 22:S839–S843, 1996.
- [35] R. S. Lively and E.P. Ney. Surface radioactivity from the deposition of  $^{222}\text{Rn}$  daughter products. *Health Phys.*, 52(4):411–415, 1987.
- [36] C. Samuelsson. Retrospective determination of radon in houses. *Nature*, 334:338–340, 1988.
- [37] B. Roos and C. Samuelsson. Experimental methods of determining the activity depth distribution of implanted  $^{210}\text{Pb}$  in glass. *J. Environ. Radioact.*, 63:135–151, 2002.
- [38] C. Samuelsson. Radon retrospective measurements. *Int. Congr. Ser.*, 1276:66–71, 2005.
- [39] L. Johansson, B. Roos, and C. Samuelsson. Alpha-particle spectrometry of large-area samples using an open-flow pulse ionisation chamber. *Apl. Radiat. Isot.*, 43:119–125, 1992.
- [40] C. Samuelsson, R. Falk, and B. Roos. Alpha particle emission from reference glass surfaces implanted with  $^{210}\text{Po}$ . *Sci. Total Environ.*, 272:175–179, 2001.
- [41] R. Falk, H. Mellander, L. Nyblom, and I. Ostergren. Retrospective assessment of radon exposure by measurements of  $^{210}\text{Po}$  implanted in surfaces using an alpha track detector technique. *Environ. Int.*, 22:S857–S861, 1996.
- [42] A. Birovljev, R. Falk, C. Walsh, F. Bissolo, F. Trotti, J. P. McLaughlin, J. Paridaens, and H. Vanmarcke. Retrospective assessment of historic radon concentrations in norwegian dwellings by measuring glass implanted  $^{210}\text{Po}$ - an international field intercomparison. *Sci. Total Environ.*, 272:181–188, 2001.
- [43] M. Zhukovsky, A. Onischenko, and V. Bastrikov. Radon measurements — discussion of error estimates for selected methods. *Appl. Radiat. Isot.*, 68:816–820, 2010.
- [44] R. S. Lively and D.J. Ney. Long-term radon concentrations estimated from  $^{210}\text{Po}$  embedded in glass. *Health Phys.*, 64:485–490, 1992.
- [45] J. Ekman, J. Helgesson, L. B. Karlsson, M. Mohsenpour, I. Riihimaki, V. Touboltsev, P. Jalkanen, A. Virtanen, H. Kettunen, J. Huikari, A. Nieminen, I. Moore, H. Penttila,

- K. Arstila, J. Aysto, J. Raisanen, and H. J. Whitlow. Retention of Pb isotopes in glass surfaces for retrospective assessment of radon exposure. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 249:544–547, 2006.
- [46] R. L. Fleischer, S. Chang, J. Farrell, R. C. Herrmann, J. MacDonald, M. Zalesky, and R. H. Doremus. Etched tracks and serendipitous dosimetry. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 120(1-4):450–456, 2006.
- [47] C. Walsh and J.P. McLaughlin. Correlation of  $^{210}\text{Po}$  implanted in glass with radon gas exposure: sensitivity analysis of critical parameters. *Sci. Total Environ.*, 272:195–202, 2001.
- [48] W. Jacobi. Activity and potential alpha energy of Rn-222 and Rn-220 daughters in different air atmospheres. *Health Phys.*, 22:441–450, 1972.
- [49] V. Schmidt and P. Hamel. Measurements of deposition velocity of radon decay products for examination of the correlation between air activity concentration of radon and the accumulated Po-210 surface activity. *Sci. Total Environ.*, 272:189–194, 2001.
- [50] J.P. McLaughlin. The application of techniques to assess radon exposure retrospectively. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 78(1):1–6, 1998.
- [51] R. W. Field, D. J. Steck, M. A. Parkhurst, J. A. Mahaffey, and M. C.R. Alavanja. Intercomparison of retrospective radon detectors. *Environ. Health Persp.*, 107(11):905–910, 1999.
- [52] F. Bochicchio, J.P. McLaughlin, and C. Walsh. Comparison of radon exposure assessment results:  $^{210}\text{Po}$  surface activity on glass objects vs. contemporary air radon concentration. *Radiat. Meas.*, 36:211–215, 2003.
- [53] B. Fitzgerald and P.K. Hopke. A prospective assessment of the  $^{210}\text{Po}$  surface collection for estimating  $^{222}\text{Rn}$  exposure. *J. Environ. Radioact.*, 51:79–98, 2000.
- [54] S. Oberstedt. Retrospective radon dosimetry. In *4th International Conference on Rare Gas Geochemistry.*, Rome, Italy, 1997. Accepted for publication in *Il Nuovo Cimento C*.
- [55] S. Oberstedt and H. Vanmarcke. Volume traps - a new retrospective radon monitor. *Health Phys.*, 70(2):222–226, 1996.
- [56] J. Paridaens, H. Vanmarcke, K. Jacobs, and Z. Zunic. Retrospective radon assessment by means of  $^{210}\text{Po}$  activity measurements. *Appl. Radiat. Isot.*, 53:361–364, 2000.

- [57] J. Paridaens, H. Vanmarcke, , Z. Zunic, and J.P. McLaughlin. Field experience with volume traps for assessing retrospective radon exposures. *Sci. Total Environ.*, 272:295–302, 2001.
- [58] Z. Zunic, I.V. Yarmoshenko, K. Kelleher, J. Paridaens, J.P. McLaughlin, I. Celikovic, P. Ujic, A.D. Onischenko, S. Jovanovic, A. Demajo, A. Birovljev, and F. Bochicchio. Comparison of retrospective and contemporary indoor radon measurements in a high-radon area of Serbia. *Sci. Total Environ.*, 387:269–275, 2007.
- [59] R.L. Fleischer. Serendipitous dosimetry - an opportunity and an opportunity lost. *Health Phys.*, 52:219–221, 1987.
- [60] S.A. Hadley, N.R. Meyer, R.L. Fleischer, and A. Cavallo. Eyeglass lenses for personal radon dosimetry. *Health Phys.*, 79:242–250, 2000.
- [61] R.L. Fleischer, N.R. Meyer, S.A. Hadley, J. MacDonald, and A. Cavallo. Personal radon dosimetry from eyeglass lenses. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 97(3):251–258, 2001.
- [62] P.N. Johanston, M. Hult, J. Gasparro, M-J. Martinez-Canet, R. Vasselli, R.J. McKenzie, S.B. Solomon, and I. Lambrichts. The distribution of  $^{210}\text{Po}$  in human bone and its impact on methods for the retrospective estimation of  $^{222}\text{Rn}$  exposure from in vivo measurements. *J. Environ. Radioact.*, 80:245–257, 2005.
- [63] J.P. McLaughlin. Approaches to the assessment of long term exposure to radon and its progeny. *Sci. Total Environ.*, 272:53–60, 2001.
- [64] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Poffijn, G. Meesen, and A. Van Deynse. Polycarbonates: a long-term highly sensitive radon monitor. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 447:619–621, 2000.
- [65] H. More and L.M. Hubbard.  $^{222}\text{Rn}$  absorption in plastic holders for alpha track detectors: a source of error. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 74:85–91, 1997.
- [66] R.L. Fleischer, P.B. Price, and R.M. Walker. *Nuclear tracks in solids: Principles and applications*. University of California Press, Berkley, CA, USA, 1975.
- [67] S.A. Durrani and R.K. Bull. *Solid state nuclear track detection principles, methods and applications*. Pergamon Books Ltd., Oxford, UK, 1987.
- [68] S.A. Durrani and R. Ilic, editors. *Radon measurements by etched track detectors: applications in radiation protections, earth sciences and the environment*. World Scientific Publishing Co, Pte, Ltd, Singapore, 1997.

- [69] <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ASTAR.html>.
- [70] L.M. Kukreja, U.K. Chatterjee, D.D. Bhawalkar, A.M. Bhagwat, and V.B. Joshi. Studies on laser cutting of plastic track detector sheets and its effects on track revelation properties. *Nucl. Tracks*, 9:199–208, 1984.
- [71] D. Pressyanov. *Nuclear track detectors: Design, methods and applications.*, chapter Nuclear tracks in polycarbonates with high radon absorption ability: Opportunities for measuring  $^{222}\text{Rn}$ . Nova Science Publishers, Inc., Hauppauge, NY, USA, 2010. In press.
- [72] G. Vancraeynest, S. Franchoo, M. Huyse, and R. Moons. Optimisation and modelling of electrochemically etched polycarbonate track detectors. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 129:65–72, 1997.
- [73] H. Vanmarcke and A. Janssens. Study of the properties of electrochemically etched alpha-tracks in a polycarbonate foil used in a radon diffusion chamber. *Nucl. Tracks*, 12:689–692, 1986.
- [74] D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, and I. Dimitrova. Sorption and desorption of radioactive noble gases in polycarbonates. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 598:620–627, 2009.
- [75] D. Pressyanov. Modeling and optimization of  $^{222}\text{Rn}$  measurements by absorption in polycarbonates and track-etch counting. *Health.Phys.*, 6(97):604–612, 2009.
- [76] D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, and I. Dimitrova. Radon mapping by retrospective measurements - an approach based on CDs/DVDs. *J. Environ. Radioact.*, 10:821–825, 2010.
- [77] S. A. R. Al-Najjar, R. K. Bull, and S. A. Durrani. Electrochemical etching of CR-39 plastic: applications to radiation dosimetry. *Nucl. Tracks*, 3:169–183, 1979.
- [78] S. A. R. Al-Najjar and S. A. Durrani. Irradiation fluence: an essential parameter in the optimization of ECE conditions. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 8:99–103, 1984.
- [79] K. Turek and G. Dajko. Effect of particle fluence on track diameter and response of electrochemically etched SSNTD. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 8:121–124, 1984.
- [80] W.G. Cross and L. Tommasino. A rapid reading technique for nuclear particle damage tracks in thin foils. *Radiat. Eff.*, 5:85–89, 1970.

- [81] M.M. Monnin. Methods of automatic scanning of SSNTDs. *Nucl. Instrum. Methods*, 173:63–72, 1980.
- [82] P.C. Popov and D.S. Pressyanov. Track density assessment by obstructed total internal reflection of a laser beam. *Radiat. Meas.*, 27:27–30, 1997.
- [83] G. Espinosa. Development in the instrumentation for counting and analysis of particle tracks in solids. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 22:113–116, 1993.
- [84] D. Azimi-Garakani. Intercomparison of automatic fission track counting systems. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, 225:101–103, 1984.
- [85] W. Birkholz, M. Steinert, P. Stöbe, S. Stetsenko, and V. Perelygin. Computer-aided evaluation of SSNTD. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 15:281–285, 1988.
- [86] A. Chambaudet, D. Fellmann, M. Fromm, and D. Klein. Counting in plastic track detectors during routine work. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 15(1-4):287–290, 1988.
- [87] F. Abu-jarad, M.A. Islam, and A. Que. Usage of an interactive image analysis system for studying various parameters of etched tracks in CR-39 and Makrofol E. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 19(1-4):233–237, 1991.
- [88] 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. *Radiat. Meas.*, 31:179–184, 1999.
- [89] H. Arias, D. Palacois, L. Sajó-Bohus, and T. Viloría. Alternative procedure for LR-115 chemical etching and alpha tracks counting. *Radiat. Meas.*, 40:357–362, 2005.
- [90] A.A.R. DaSilva and E.M. Yoshimura. Track analysis system for application in alpha particle detection with plastic detectors. *Radiat. Meas.*, 39:621–625, 2005.
- [91] P. Kokkas, P. Kokkinidis, P. Pavlopoulos, and S. Vlachos. An image processing system for track-etch detectors. *Radiat. Meas.*, 26(2):187–191, 1996.
- [92] R.B. Gammage and G. Espinosa. Digital imaging system for track measurements. *Radiat. Meas.*, 28(1-6):835–838, 1997.
- [93] A. Boukhair, A. Haessler, J.C. Adloff, and A. Nourreddine. New code for digital imaging system for track measurements. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 160:550–555, 2001.

- [94] M. Dolleiser and S.R. Hashemi-Nezhad. A fully automated optical microscope for analysis of particle tracks in solids. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 198:98–107, 2002.
- [95] D. Nikezic and K.N. Yu. Computer program TRACK\_TEST for calculating parameters and plotting profiles for etch pits in nuclear track materials. *Comput. Phys. Commun.*, 174:160–165, 2006.
- [96] D.L. Patiris, K. Blekas, and K.G. Ioannides. TRIAC: A code for track measurements using image analysis tools. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 244:392–396, 2006.
- [97] L. Tsankov, D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, and I. Dimitrova. Automatic counting of chemically etched tracks by means of a computer scanner. *Radiat. Meas.*, 39:557–559, 2005.
- [98] F. Hernández, S. Gonzalez-Manrique, L. Karlsson, J. Hernández-Armas, and A. Aparicio. Counting radon tracks in Makrofol detectors with the "image reduction and analysis facility"(IRAF) software package. *Radiat. Meas.*, 42:496–504, 2007.
- [99] Z.-F. Ibrahimi and J.C.H. Miles. Performance review of a slide scanner based automated counting system for PADC radon detectors. *Radiat. Meas.*, 43:S395–S400, 2008.
- [100] K. Amgarou, L. Font, D. Albarracín, C. Domingo, F. Fernáñdes, and C. Baixeras. Semi-automatic evaluation system for nuclear track detectors applied to radon measurements. *Radiat. Meas.*, 33:203–209, 2001.
- [101] <http://rsbweb.nih.gov/ij/>.
- [102] K. Mitev, Y. Madzhunkov, G. Gerganov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and D. Pressyanov. An algorithm for automatic counting of electrochemically etched tracks in compact disks used for retrospective measurements of radon-222. In *2008 Nuclear Science Symposium. IEEE-NSS Conf. record: 1000508.*, pages 827–832, Dresden, Germany, 2008.
- [103] 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.
- [104] M. Sezgin and B. Sankur. Survey over image thresholding techniques and quantitative performance evaluation. *J. Electr. Imag.*, 13:146–165, 2004.
- [105] Z. Bell. A Bayesian/Monte Carlo segmentation method for images dominated by gaussian noise. *IEEE Trans. Pattern Anal. Mach. Intell.*, 11:985–990, 1989.

- [106] И. Димитрова, С. Георгиев, К. Митев, and Д. Пресиянов. Калибриране на компакт дискове за измервания на Радон-222 във въздух. In *Сборник доклади от ІХХ национален научен симпозиум „Метрология и метрологично осигуряване“, 2009.*, pages 347–354, Созопол, България, 2009.
- [107] [http://www.genitron.de/products/alpha\\_slides.html](http://www.genitron.de/products/alpha_slides.html).
- [108] D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and K. Mitev. Measurement of  $^{222}\text{Rn}$  by absorption in polycarbonates - research and practice. In *Proceedings of 18th AARST International Radon Symposium.*, pages 1–10, Las Vegas, USA, 2008. The America Association of Radon Scientists and Technologists.
- [109] D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and K. Mitev. Radon survey based on home stored CDs/DVDs. In *Proceedings of Third European IRPA Congress.*, Helsinki, Finland, 2010. International Radiation Protection Association.
- [110] I. Dimitrova, D. Pressyanov, S. Georgiev, and P. Yankov. Logistic of surveys of retrospective radon concentrations by home-stored CDs/DVDs. *Radiat. Prot. Dosim.*, 145(2-3):300–304, 2011.
- [111] Z.-F. Ibrahimi, C.B. Howarth, and J.C.H. Miles. Sources of error in etched-track radon measurements and a review of passive detectors using results from a series of radon intercomparisons. *Radiat. Meas.*, 44:750–754, 2009.
- [112] D.S. Pressyanov, M.G. Guelev, and B.G. Sharkov. Radon and radon progeny outdoors in a valley of enhanced natural radioactivity. *Atmos. Environ.*, 29(23):3433–3439, 1995.
- [113] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Report to the General Assembly, 2000. Sources and effects of ionizing radiation.* UN Publications, New York, NY, USA, 2000.
- [114] 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. *Appl. Radiat. Isot.*, 52:427–434, 2000.
- [115] D. S. Pressyanov, K. K. Mitev, and D. H. Stefanov. Measurements of  $^{85}\text{Kr}$  and  $^{133}\text{Xe}$  in air by absorption in Makrofol. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 527:657–659, 2004.



- [116] K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, T. Boshkova, and V. Zhivkova. Measurements of krypton-85 in water by absorption in polycarbonates. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 603:491–494, 2009.
- [117] I. Dimitrova, K. Mitev, D. Pressyanov, S. Georgiev, and T. Boshkova. Measurements of  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in water by absorption of radon in polycarbonates and etching alpha-tracks. *Radiat. Meas.*, 46(1):119–126, 2011.
- [118] D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, E. Hristova, and K. Mitev. Measurement of radon-222 in water by absorption in makrofol. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 574:202–204, 2007.
- [119] S. Georgiev, K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, and T. Boshkova. Numerical modeling of the emission and detection of beta-particles from radioactive noble gases absorbed in polycarbonates. to be submitted.
- [120] I. Dimitrova, K. Mitev, D. Pressyanov, and S. Georgiev. Desorption of  $^{222}\text{Rn}$  from polycarbonate samples. *Trans. BgNS*, pages 33–37, 2008.
- [121] Т. Бошкова. *Методика за изпитване на проби от околната среда за съдържание на естествени и техногенни радионуклиди с нискофонови гамаспектрометрични системи с полупроводников детектор от свръхчист геманий (HPGe) SILENA/CANBERRA*. МОСВ, ИАОС, София, България, 2003.
- [122] 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. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 629(1):323–328, 2011.
- [123] Министерство на народното здраве и Комитет по териториално и селищно устройство. Комитет за опазване на природната среда. *Наредба № 7 за показатели и норми за определяне на качеството на течащите повърхностни води.*, volume 96. Държавен вестник, София, България, 1986.
- [124] K. Mitev and T. Boshkova. Monte carlo calculation and experimental validation of hpge detector efficiencies for measurement of bulk sources in close geometries. In *Proceedings of the 19th National Scientific Symposium with international participation “Metrology and Metrology Assurance 2009“*., pages 371–379, Sozopol, Bulgaria, 2009.
- [125] M.E. Kitto, A. Bari, D.K. Haines, T.A. Menia, and E.M. Fielman. Laboratory intercomparison of radon-in-water standards. In *Proceedings of the 2009 International Radon Symposium.*, pages 90–96, St. Louis, MO, USA, 2009. AARST.

- [126] И. Димитрова, С. Георгиев, К. Митев, Т. Бошкова, and Д. Пресиянов. Корекция за облъчване в малък обем при измерване на  $^{222}\text{Rn}$  във води чрез абсорбция в поликарбонати. In *Сборник доклади от XX национален научен симпозиум „Метрология и метрологично осигуряване“*, 2010., pages 254–259, Созопол, България, 2010.
- [127] 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.
- [128] World Health Organization. *Guidelines for drinking water quality*. WHO press, Geneva, Switzerland, 3rd edition, 2008.
- [129] Environmental Protection Agency. *National Primary Drinking Water Regulations*. Federal Register, Washington, DC, USA, 2000.
- [130] J-M. Lee and G. Kim. A simple and rapid method for analyzing radon in coastal and ground waters using a radon-in-air monitor. *J. Environ. Radioact.*, 89:219–228, 2006.
- [131] W.S. More. Large groundwater inputs to coastal waters revealed by  $^{226}\text{Ra}$  enrichments. *Nature*, 380:612–614, 1996.
- [132] H.F. Lucas. Improved low-level alpha-scintillation counter for radon. *The review of scientific instruments*, 28(9):680–683, 1957.
- [133] M. Schubert, W. Buerkin, P. Pena, A. E. Lopez, and M. Balcazar. On-site determination of the radon concentration in water samples: Methodical background and results from laboratory studies and a field-scale test. *Radiat. Meas.*, 41:492–497, 2006.
- [134] W.C. Burnett, G. Kim, and D. Lane-Smith. A continuous monitor for assessment of  $^{222}\text{Rn}$  in coastal ocean. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 249:167–172, 2000.
- [135] H. Dulaiova, R. Peterson, W.C. Burnett, and D. Lane-Smith. A multi-detector continuous monitor for assessment of  $^{222}\text{Rn}$  in the coastal ocean. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 263(2):361–365, 2005.
- [136] H. Surbeck. A radon-in-water monitor based on fast gas transfer membranes. In *Int. Conf. on technologically enhanced natural radioactivity (TENR) caused by non-uranium mining, 1996.*, Szczyrk, Poland, 1996.

- [137] K. Freyer, H. C. Treutler, G. Just, and H. v. Philipsborn. Optimization of time resolution and detection limit for online measurements of  $^{222}\text{Rn}$  in water. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 257:129–132, 2003.
- [138] 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. Radiat. Isot.*, 66:1939–1944, 2008.
- [139] P. Kotrappa and W.A. Jester. Electret ion chamber radon monitors measure radon in water. *Health Phys.*, 64:397–405, 1993.
- [140] G. Somogyi and L. Lenart. Time-integrated radon measurements in spring and well waters by track technique. *Nucl. Tracks*, 12(1-6):731–734, 1986.
- [141] M.E. Kitto, E.M. Fielman, D.K. Haines, T.A. Menia, and A. Bari. Performance of a commercial radon-in-water measurement kit. *J. Environ. Radioact.*, 99:1255–1257, 2008.
- [142] I. Csige, J. Hakl, A. Vasarhelyi, and I. Hunyadi. Radon transport in a drilled well studied by etched track type radon monitors. *Radiat. Meas.*, 25(1-4):561–564, 1995.
- [143] A. Vasarhelyi, I. Csige, J. Hakl, and I. Hunyadi. Spatial distribution of radon content of soil-gas and well-waters measured with etched track radon monitors. *Radiat. Meas.*, 28(1-6):685–690, 1997.
- [144] I. Gudjon and P.T. Gudjonsson. A compact automatic low-level liquid scintillation system for radon-in-water measurement by pulse pair counting. *Appl. Radiat. Isot.*, 53:377–380, 2000.
- [145] M.G. Lopez, A.M. Sanchez, and V.G. Escobar. Application of ultra-low lever liquid scintillation to the determination of  $^{222}\text{Rn}$  in groundwater. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 261(3):631–636, 2004.
- [146] D. Karamanis, K.G. Ioannides, and K.C. Stamoulis. Determination of  $^{226}\text{Ra}$  in aqueous solutions via sorption on thin films and  $\alpha$ -spectrometry. *Anal. Chim. Acta*, 573-574:319–327, 2006.
- [147] G. Jia, G. Torri, P. Innocenzi, R. Ocone, and A. Di Lullo. Determination of radium isotopes in mineral water12 samples by  $\alpha$ -spectrometry. *Int. Congr. Ser.*, 1276:412–414, 2005.
- [148] H. Surbeck. Determination of natural radionuclides in drinking water; a tentative protocol. *Sci. Total Environ.*, 173/174:91–99, 1995.

- [149] N. Dimova, W.C. Burnett, E.P. Horwitz, and D. Lane-Smith. Automated measurement of  $^{224}\text{Ra}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in water. *Appl. Radiat. Isot.*, 65:428–434, 2007.
- [150] D. Pressyanov, S. Georgiev, I. Dimitrova, K. Mitev, and T. Boshkova. Determination of the diffusion coefficient and solubility of radon in plastics. *Radiat. Prot. Dosim.*, 145(2-3):123–126, 2011.
- [151] L.A. Currie. Limits for qualitative detection and quantitative determination: application to radiochemistry. *Anal. Chem.*, 40:586–593, 1968.
- [152] Т. Бошкова. Граници на детектиране и минимална детектеруема активност. *Годишник на СУ „Св. Климент Охридски“*, 99:121–140, 2006.