



Софийски университет "Св. Климент Охридски"

Физически факултет

ДИСЕРТАЦИЯ

за придобиване на образователната и научна степен доктор

Научна специалност: 01.03.04 Ядрена физика

Димитър Петков Димитров

*Облъчване от радон на професионални групи
ангажирани в добивната промишленост.*

Научен ръководител: проф.дфзн Добромир Пресиянов

София

2020

Благодарности

Благодаря на учителката ми по физика Роска Въчева, която ми показва красотата на физиката и ми помогна да усетя радостта от разрешаването на различни физични проблеми.

Благодаря на моя колега и ръководител Добромир Пресиянов за предоставената ми възможност да се включа в тази нова и важна тема. Благодаря му за новите неща които научих през тези години. Благодаря му за доверието към работата ми, което ми позволи да добия самочувствие и в същото време бъда по-съсредоточен и по-внимателен.

Благодаря на Красимир Митев, за дискусиите с които ми помогна да навлеза по дълбоко в тематиката.

Благодаря на Татяна Бошкова, доброто отношение към мен.

Благодаря на Ивелина Димитрова, за многото съвети, за подкрепата и основателните критики които е имала към мен.

Благодаря на Страхил Бойчев за помощта и съветите които съм имал от него по всяко време (на денонощието).

Благодаря на колегите от лабораторията по Дозиметрия и лъчезащита, за честта и удоволствието да работя с тях. Благодаря им за пълното съдействие което съм имал от тях.

Благодаря на колегите от МГУ, че ми позволяваха да се занимавам с това което ми харесва и ми помогнаха в това начинание с всички средства и с търпението си.

Благодаря на Петко Узунов за доброто отношение. Благодаря на Людмил Цанков за помощта и окуражителните думи.

Благодаря на родителите ми, че ми помогнаха да се занимавам с това, което обичам.

СЪДЪРЖАНИЕ

I. Увод.....	1
II. Обзор на радоновия проблем.....	4
II.1. Източници на радон във въздуха.....	4
II.2. Радонов проблем. Връзката облъчване от радон – риск.....	7
II.3. Детектори, използвани за измерване на радон.....	11
II.3.1. Пасивни диелектрични детектори на следи (треков метод).....	12
II.3.2. Дифузионни камери с трекови детектори.....	13
II.3.3. Дозиметри с активен въглен.....	15
II.3.4. Дозиметри с електретен детектор.....	15
II.3.5. Електронни интегриращи устройства.....	16
II.3.6. Монитори за непрекъснати измервания.....	17
II.3.7. Поликарбонатен CD/DVD метод.....	18
II.4. Необходимост от ретроспективни измервания на радон.....	20
II.4.1. Методи за ретроспективни измервания в жилища.....	21
III. Компакт дисков метод за кумулативно измерване на радон и торон...	23
III.1. Кумулативно измерване на радон ^{222}Rn	23
III.1.1. Химично преецване CPE.....	24
III.1.2. Електрохимично ецване ECE и изброяване на трековете.....	26
III.1.3. Определяне на интегрираната концентрация ^{222}Rn	29
III.2. Теоретичен модел.....	30
III.2.1. Моделиране на CF.....	32
III.3. Влияние на различните фактори върху трековата плътност на дълбочина $>76\mu\text{m}$	36
III.4. Калибриране.....	37
III.4.1. Работа на системата при постоянна активност на радон.....	40
III.4.2. Работа при затворена система за облъчване от радон.....	41
III.4.3. Фон.....	41
III.5. Особенности на калибрирането при ретроспективни измервания.....	42
III.6. A posteriori температурна корекция.....	43

III.7. Принцип на CD/DVD метода за измерване на торон ^{220}Rn	47
III.8. Калибриране по торон.....	53
IV. Измервания в реални условия.....	57
IV.1. Пилотни кумулативни изследвания в подземни обекти на радон ^{222}Rn и торон ^{220}Rn	57
IV.1.1. Пилотни измервания на радон и торон в мини.....	58
IV.1.2. Пилотни измервания на радон и торон в пещери.....	60
IV.2. Сравнение между CD/DVD и дифузионни камери в реални условия)	61
IV.3. Влияние на тънък воден слой върху повърхността на CD/DVD детектори.....	65
IV.4. Паралелни кумулативни измервания на радон и торон в мини.....	67
V. Използване на CD/DVD метода за изследване на пространствени или времеви изменения на нивото на радон.....	71
V.1. Влияние на реконструкцията на жилища върху нивата на радон в тях	71
V.1.1. Методология.....	73
V.1.2. Организация на измерванията.....	78
V.1.3. Резултати и обсъждане.....	79
V.2. Диагностика на вентилацията на подземна мина и идентифициране на източници на замърсяване с радон / торон.....	83
VI. Пасивен детектор за радон с чувствителност в ограничен времеви прозорец.....	86
VI.1. Концепция.....	87
VI.2. Моделиране.....	89
VI.3. Резултати и обсъждане.....	93
VI.4. Заключение.....	97
VII. Заключение и приноси на дисертацията.....	99
Литература.....	101
Приложения.....	114

Списък на по - често използваните съкращения и означения:

РБГ	Радиоактивен благороден газ
SSNTD	От англ. Solid State Nuclear Track Detector – Твърдотелен детектор на следи
КПР	Краткоживеещи продукти на разпадане на ^{222}Rn
MDAC	от англ. Minimum Detectable Activity Concentration – Минимална детектируема концентрация
ДПР	Дъщерни продукти на радон
ДПТ	Дъщерни продукти на торон
$T_{1/2}$	Период на полуразпадане
A	Активност
L	Дебелина (на пластинка)
$\overline{A_v}$	средната обемна активност на ^{222}Rn във въздуха
D	дифузият коефициент на атомите на ^{222}Rn в поликарбонатния материал
I_v	интегрираната по времето обемна активност
n	Атомна концентрация
$\mathcal{E}$	Ефективност при измерване
A_0	активността на ^{226}Ra
E	еманационната способност на радоновия източник
c_1	концентрация на ^{222}Rn атоми в материал (поликарбонат)
λ	константа на разпадане
$L_D = \sqrt{D/\lambda}$	дифузната дължина на ^{222}Rn в поликарбонатния материал
t_{exp}	време на облъчване

Глава I

Увод

Радонът-222 е радиоактивен благороден газ (РБГ), открит от немския химик Фридрих Дорн през 1900 г. Той е изотоп от уран-радиевото семейство, произхождащо от уран (^{238}U). В естествената среда се срещат три радиоактивни изотопа на елемента радон, които са част от естествените радиоактивни семейства: актинон (^{219}Rn) ($T_{1/2} = 3.96\text{s}$) от семейството на ^{235}U ; торон (^{220}Rn) ($T_{1/2} = 55,6\text{s}$) от семейството на ^{232}Th и радон (^{222}Rn) ($T_{1/2} = 3,82\text{d}$) от семейството на ^{238}U [1] (Приложение 3,2,1).

Още през 16-ти век швейцарският лекар и естествоизпитател Парацелс споменава в своята книга за „мистериозна Шнеебергска миньорска болест“ [2]. Това се счита за едно от най-старите писмени доказателства за съществуването на т.н. „радонов проблем“. Голяма част от миньорите в мините на Шнееберг, Саксония и Яхимов, Чехия са умирали в следствие на тази мистериозна болест. Този факт е описан и в забележителната книга за минното дело през тази епоха на Агрикола "De Re Metalica" [3].

В следващите векове медицината се развива и през 1879 г. е установено, че тази болест представлява рак на белите дробове [4]. След откриването на радона, той е посочен като вероятен причинител. Това мнение се затвърждава след 1924 г., когато в мините в Шнееберг за пръв път са измерени високи нива на радон-222 [5]. През 1951г. Бейл [6], намира истинската причина за развитие на белодробен рак при миньорите, а именно вътрешното облъчване от късоживеещите продукти на разпадане на радона (наричат се още дъщерни продукти на радона (ДПР)– това са ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi и ^{214}Po като ^{214}Po винаги е в равновесие с ^{214}Bi и това е причината да не се разглежда самостоятелно). Бейл доказва, че средно 98% от вътрешното облъчване на човека, е резултат от вдишването на дъщерни радиоактивни продукти на радона, които се задържат върху бронхиалния епителиум на белите дробове. Поради инертния характер на радон (^{222}Rn) (той не се задържа в белите дробове), само 2% от облъчването се дължи на него самия [7].

Съвременната наука разглежда радоновия проблем в много по-широк контекст от този на професионална вредност за подземните миньори. Облъчването от радон формира около половината от ефективната доза на човек, дължаща се на естествения радиационен фон [1]. Всяка година от рак на белите дробове в целия свят се разболяват около 1,8 милиона човека, като това е едно от онкологичните заболявания с най-лоша прогноза за развитие – повечето от болелите умират в рамките на няколко години. По данни на Световната здравна организация (СЗО) за 2014г. от 3% до 14% (около 230 000 човека) от заболяванията се дължат на радон. Това е вторият рисков фактор след тютюнопушенето, а при непушачите този фактор е номер едно [8].

Единственият начин да се оценят нивата на облъчване, дължащи се на различните изотопи на радона, е чрез измерване. Тъй като основната част от облъчването на човека се получава от облъчването с ДПР, тяхното измерване е по-пряко свързано с погълнатата доза. Към настоящия момент обаче само измерванията на радон могат да бъдат правени масово и с голяма продължителност, каквито са препоръките на СЗО. Понастоящем референтните нива за сгради и работни места в Европейския съюз [9] и в нашата страна [10] са дадени в средногодишни обемни активности на ^{222}Rn . За България референтните нива са 300 Bq m^{-3} за сгради и работни места.

Оценката и защитата от облъчването от радон и късоживеещите му продукти на разпадане при подземни миньори са изправени пред редица предизвикателства, свързани с методи и средства за измерване, които да са подходящи за използване в подземни рудници.

Основна цел на дисертацията е да се изследват нови методи за кумулативни измервания на радон и торон, които да са надеждни за използване в условията на работна среда в подземни и надземни обекти от добивната промишленост. Съпътстваща цел е да се изследват възможностите които такива методи дават за диагностика на източници на замърсяване с радон в мини, както и за установяване на измененията на радон в миналото в сгради.

В настоящата дисертация са представени следните изследвания свързани с тази цел:

1. Изследване на приложимостта на CD/DVD метода за измерване на радон/торон в подземни изработки (минни галерии, пещери и др.). Това включва уточняване на влиянието на подземните условия върху показанията на тези детектори и сравнение с други методи.
2. Изследване на корелацията между нивата на радон и торон в подземни рудници.
3. Изследване на възможността чрез използване на два или повече CD/DVD диска, да се установят изменения в нивата на радон от пространствен и времеви характер. Оценка на възможността това да се използва за идентифициране на източници на замърсяване с радон на рудничния въздух в подземни изработки и за установяване на влиянието на реконструкция в сгради върху нивата на радон.
4. Изследване на възможността да се разработи радонов детектор с чувствителност само в определен времеви прозорец.

Изследванията в някои от тези направления разкриха също нови възможности за приложение на CD/DVD метода, вкл. за изследване на влиянието на енергоспестяващото саниране на сгради върху нивата на радон в тях.

Глава II

Обзор на радоновия проблем

II.1 Източници на радон във въздуха.

Естественият уран е разпространен по цялата земна кора, като неговото съдържание в почвата се оценява средно на $3 \cdot 10^{-4} \%$, което се равнява на около 3 грама в 1 тон земна маса. Съответно ^{222}Rn , като член на уран - радиевото семейство, е разпространен навсякъде по Земята - в почви, скали, минерали, води, въздух. Част от радона, отделен в обема земна маса, мигрира през въздушните пори и цепнатини, достига до нейната повърхност, след което постъпва в приземния атмосферен въздух. Процесът на отделяне на радон от почвата и постъпването му във въздуха се нарича ексхалация. Също така, радонът може да се разтваря във вода и в последствие да дееманира от нея. Ексхалацията на радон от земната повърхност зависи и от нивото на подпочвените води.

Разпространението на радона по въздушен път в околната среда става чрез естествена дифузия и конвекция и зависи от редица природни и климатични фактори - атмосферно налягане, температура на въздуха, валежи, вятър, релеф и други природни особености. Концентрацията на радон в атмосферата намалява с увеличаване на височината. Освен това концентрацията му в атмосферния въздух се променя в зависимост от климатичните сезони, като обикновено най-високи стойности се регистрират през летните месеци. В рамките на денонощието концентрацията на радон също се променя - максимумът се наблюдава през нощта, а минимумът – през деня [11,12]. Концентрацията на ^{222}Rn в сгради е по - висока и зависи от терена върху който е построена сградата, от вида на строителните материали и др. Средната концентрация е около 40 Bq/m^3 [8], но са налице големи вариации, включително с порядъци.

Основните източници на радон в затворени помещения са [8]:

- Почвения газ, проникващ през основите на сградата;
- Дееманацията на радон от вода;
- Ексхалация от строителни материали с повишено съдържание на ^{226}Ra ;
- Постъпление чрез атмосферен въздух от околната среда. Този източник е второстепенен, но може да стане съществен, ако в близост има обекти и съоръжения (минни обекти, тунели за магистрални тръби, сондажи и др.).

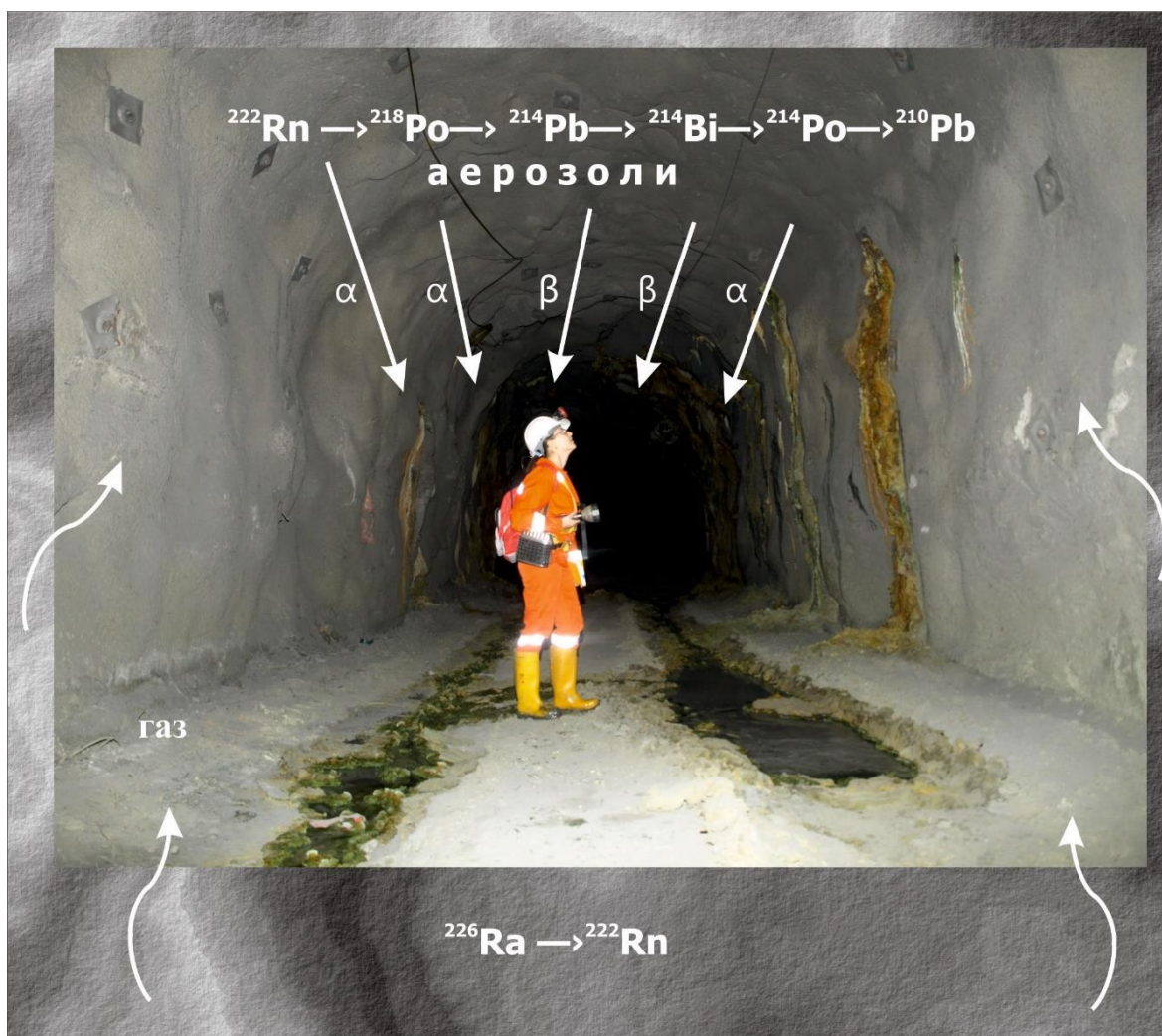
След отделянето на радона във въздушна среда, той се разпада на късоживеещи дъщерни продукти ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi и ^{214}Po , до изотопа на олово - 210, който е с период на полуразпадане $T_{1/2}=22\text{y}$.

Тези радионуклиди (изотопи на елементи с метален характер) бързо прилепват към съществуващите микроскопични прахообразни частици във въздуха (аерозоли) и при инхалация се задържат в дихателната система, за разлика от радона, който се издишва обратно [13]. Там продължават своя процес на разпадане с излъчване на йонизиращи частици. В радиологичен аспект най – важни са α – частиците излъчвани при разпадането на ^{218}Po и ^{214}Po . Поради малкия период на полуразпадане на ^{214}Po (Приложение 1) между ^{214}Bi и ^{214}Po винаги е налице радиоактивно равновесие.

Част от дъщерните продукти на радона съществуват във въздуха и в „несвързана“ фракция - като част от атомно - молекулни кълъстери. Свързаната фракция са атоми прилепнали към аерозоли с размери от 10 до 1000 nm. Тъй като коефициента на дифузия на по - малките частици е по - голям, скоростта на отлагане на „несвързаната“ фракция върху повърхности е по - голяма.

В Приложение 1 е показана схемата на разпадане на ^{222}Rn , а на фигура II.1 е показано постъплението на ^{222}Rn в минните галерии и в организма на работещите в тях.

След Втората световна война в много страни по света, включително и в България, започва добив на уранови руди. В рудничният въздух неизбежно присъства



Фигура II.1. постъплението на ^{222}Rn в минните галерии и насищането на въздуха с ДПР.

с висока концентрация и радон заедно с продуктите му на разпадане. Оказва се, че високи концентрации на радон и ДПР се срещат и във въздуха на редица неуранови рудници [14]. В урановите мини в България измервания на радон започват от 1956 г. От 1958 г. тези измервания се провеждат регулярно (след 1972г. се измерват и ДПР) до закриването на уранодобива през 1992 г.

Любопитен, но не широкоизвестен факт е, че една от първите страни в света, в които започват да се провеждат измервания на радон в околната среда е България [15]. В България измервания на радон в околната среда (в минерални води) започват

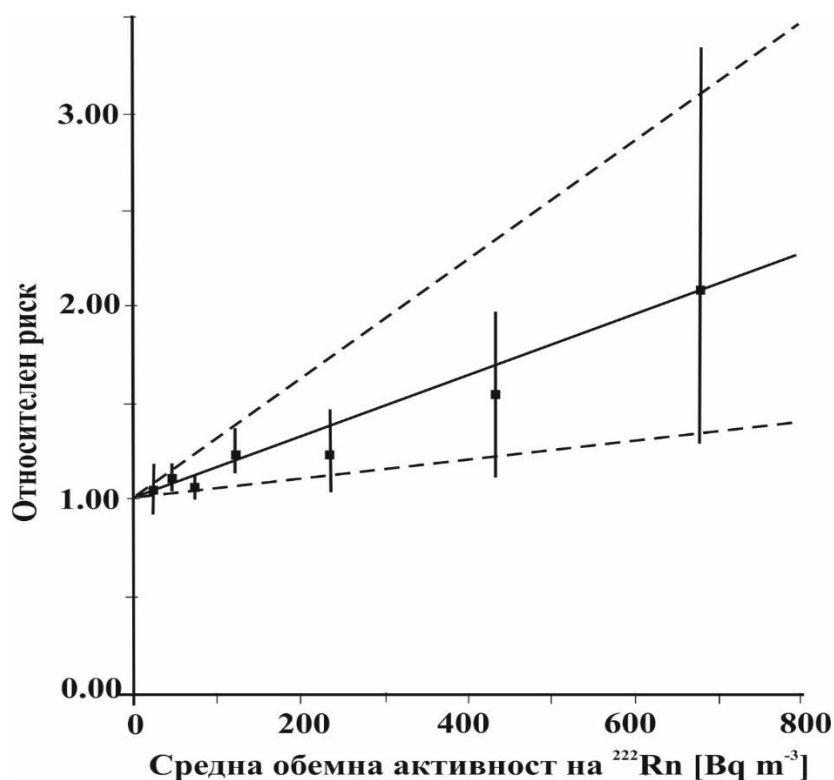
да се правят от 1907г. [15,16]. Измервания на радон и дъщерни продукти на радон са правени и в полиметални мини, като Бургаските медни мини „Пропаднала вода“, „Росен“, „Меден рид“, „Оброчище“, рудници към Горубсо и др [14]. До 1972 г. радиационния мониторинг на подземните мини се основава само на измервания на радон. В България, от 1972 до 1979г. са правени паралелни измервания на ^{222}Rn и дъщерни продукти в уранови и полиметални мини [17]. Тези измервания са позволили да се определи среден равновесен фактор (F) за всяка от изследваните мини. (за дефиницията на равновесен фактор виж Приложение IV). По отношение на помещения в сгради изследванията показват, че средната стойност на F за затворени помещения може да варира от 0,1 до 0,9 [11]. На база на многобройните измервания в жилищни сгради е прието, че средната стойност на този фактор да бъде 0,4.

Съвременната наука започна да отделя внимание и на един друг радиоактивен газ, появяващ се често заедно с радон ^{222}Ra , но и самостоятелно - торон ^{220}Ra [18,19]. Участието му във формиране на средната доза за населението и за професионални групи изложени на риск от торон подлежи на уточняване.

II.2 Радонов проблем. Връзката облъчване от радон – риск

Както беше подчертано, през 2009 г. Световната здравна организация посочи радона като втори по значимост причинител на белодробен рак след тютюнопушенето, а за хора, които никога не са пушили той е на първо място. Преобладава мнението, че няма безопасен праг на радоново ниво под който той да не представлява риск за здравето [8,13,20].

Понастоящем е установена пряка корелация между нивата на радон в сгради и честотата на белодробен рак на база на преки епидемиологични проучвания за населението (фигура II.2) [8]. Статистически значим (при ниво на значимост 95%) повишен риск от рак на белите дробове се наблюдава дори при нива под 200 Bq m^{-3} .



Фигура II.2. Относителен риск за белодробен рак спрямо средната радонова концентрация в жилищни помещения [8].

Анализът на резултатите от проучвания сред населението показва, че повишаването на радоновото ниво в дългосрочен план с 100 Bq m^{-3} води до повишаване на риска от белодробен рак средно с 16% (при 95% доверителен интервал 5-31%) [8,20,21].

Извършване на епидемиологични изследвания сред населението чрез различните подходи са разгледани в [1,8,20,21,22,23]. При такива изследвания основно приложение намират твърдотелните детектори на α - частици (SSNTD). Основно изискване при тези изследвания е реконструкция на облъчването във времето, когато е получено облъчването, формирало риска за развитие на белодробния рак. Поради латентния период на развитието на рак на белите дробове, рискът от неговото развитие в настоящият момент зависи от дозата формирана в резултат на облъчване в миналото – в интервал 5 – 35 години назад във времето. За нуждите на епидемиологичните проучвания е необходимо да бъде реконструирано облъчването за

периоди от 5 до 35 години назад във времето [7,24,25]. За тази цел най-подходящи са така наречените ретроспективни измервания. Такива методи са: методът на имплантираното в стъклото олово ^{210}Pb , методът на обемните уловки, методът на натрупаното в костите ^{210}Pb , методът на лещите от очилата [26,-,32]. Такъв метод за ретроспективно измерване е и CD/DVD метод, предложен от проф. Добромир Пресиянов и сътрудници през 1999 г. [33, 34, 35]. През 2011г. проф. Пресиянов предложи като се използва развитие на компакт-дисковия метод, да се извършват ретроспективни измервания и на торон ^{220}Rn [36,37].

Изискванията към тези методи са:

- Методът да обхваща достатъчно дълъг минал период.
- Да позволява сравнително точна оценка на средната концентрация на радон – например с относителна неопределеност в рамките на 25% [7].
- Методът да е подходящ за мащабни кампании - лесен са работа и да има ниска цена.
- Чувствителността му да е достатъчна за количествени измервания в диапазона от концентрации, характерни за жилища (средно за жилища 40 Bq m^{-3} но се срещат от няколко до няколко хиляди Bq.m^{-3}) [7].

Проучванията до този момент са повод Международната Комисия по Радиационна Защита (International Commission on Radiological Protection – ICRP) да препоръча на националните органи по радиационна защита въвеждането на референтни нива на концентрациите на радон в жилища и на работни места [38]. Въвеждането на такива нива за жилищни сгради се изисква и от Комисията на Европейската Общност [9]. Тези препоръки са възприети в много европейски страни и са въведени референтни нива над които е необходимо намеса с цел снижаване на концентрацията на радон [39,40,41]. В България препоръките са отразени в новата Наредба за радиационна защита приета с Постановление № 20 от 20 февруари 2018 г [10]. В тази Наредба референтните стойности за средногодишната активност на радон във въздуха на обособени работни места в закрити помещения и жилища са 300 Bq m^{-3} . При констатиране на по-високи нива на радон е необходимо да се предприемат мерки за неговото снижаване и информиране на населението за облъчването от радон в закрити помещения и свързаните с това рискове за здравето. Най-често за

намаляване на концентрацията на радон в сгради се прилагат стандартни мерки като подобряване на вентилацията, изолиране на пътищата за проникване на радон в засегнатите помещения, “запечатване” на подове и стени с подходящи покрития, но най – добри резултати се постигат с изграждане на противорадонови инсталации от активен тип [1,8]. В сградите с измерено повишено съдържание на радон трябва да се провежда системен контрол на неговото ниво.

Условията в подземните пространства (мини и пещери) са различни от тези в сгради. Налице са високи нива на запрашеност, влажност и др., с възможност за големи вариации на радона и вероятност за намиране на изключително високи концентрации [1]. Оценката на облъчването на миньорите, както и сравнението с референтните нива обаче също изисква провеждането на кумулативни измервания.

Наличието на измервания по протежение на минните галерии би хвърлило светлина върху източниците на замърсяване с радон на рудничния въздух, както и за ефективността на вентилацията. Основна трудност при тези измервания са методите и детекторите, с които се измерват радоновите нива при такива подземни условия, както и вариациите във времето на тези нива.

До момента в мините остава до голяма степен неизяснен и приносът на торона в облъчването на миньорите. Този радиоактивен газ е от семейството на ^{232}Th (торий) и се получава при радиоактивното разпадане на ^{224}Ra (Приложение 2). Неговият период на полуразпадане е 55,6s. Този кратък период на полуразпадане не позволява на атомите да мигрират на големи разстояния от мястото им на есхалиране. Дълго време се приемаше, че облъчването от торон е незначително, в сравнение с това от радон, докато не бяха установени сгради, където облъчването свързано с ^{220}Rn е съществено и дори може да надхвърля това от радон. Подобно на ^{222}Rn и тук дозата се формира от дъщерните продукти (^{216}Po , ^{212}Bi + $^{212}\text{Po}/^{208}\text{Tl}$). До момента приносът на торона в общото облъчване на миньорите не е уточнен. Основно препятствие е липсата на подходящи детектори на торон за условията в мините и пещерите.

В жилищни помещения са регистрирани случаи при които над 50% от облъчването се дължи именно на ^{220}Rn и неговите ДПТ [40]. Измерванията на торон са важни и в друг аспект: Много често детектори за измерване на радон се оказват чувствителни и за торон и дават смесен сигнал (на ^{222}Rn и ^{220}Rn) [42], и това може да

доведе до погрешни изводи и неправилни коригиращи мерки по отношение на радона. До 2011г. липсваха методи за ретроспективни измервания на торон.

II.3. Детектори, използвани за измерване на радон

Понастоящем се използват разнообразни методи и инструменти за измерване на радон в жилища, работна и околна среда. Тъй като акцентът на настоящата дисертация е върху кумулативни измервания, при които може да се определи средната обемна активност за по-продължителен период от време, в таблица II.1 са дадени обобщено основните методи за такива измервания [8].

Таблица II.1. Методите за измерване на радон [8].

Детектор	Пасивен/ Активен	Неопреде- леност (%)	Продължи- телност на измерването	Цена	влаго- устойчивост
(SSNTD)*	Пасивен	10-25	1-12 месеца	ниска	Зависи от начина на използване
Активен въглен	Пасивен	10-30	1-7 дни	ниска	не
Електретен	Пасивен	8-15	5 дни - 1 година	средна	не
Електронни устройства	Активен	~ 25	2 дни - година(и)	средна	не
Монитори за непрекъснати измервания	Активен	~ 10	2 дни - година(и)	висока	не
CD/DVD	Пасивен	10-20	година(и)	ниска	да

*SSNTD (от Solid State Nuclear Track Detector) е международно използвано съкращение за треков детектор (пасивен диелектричен детектор на следи).

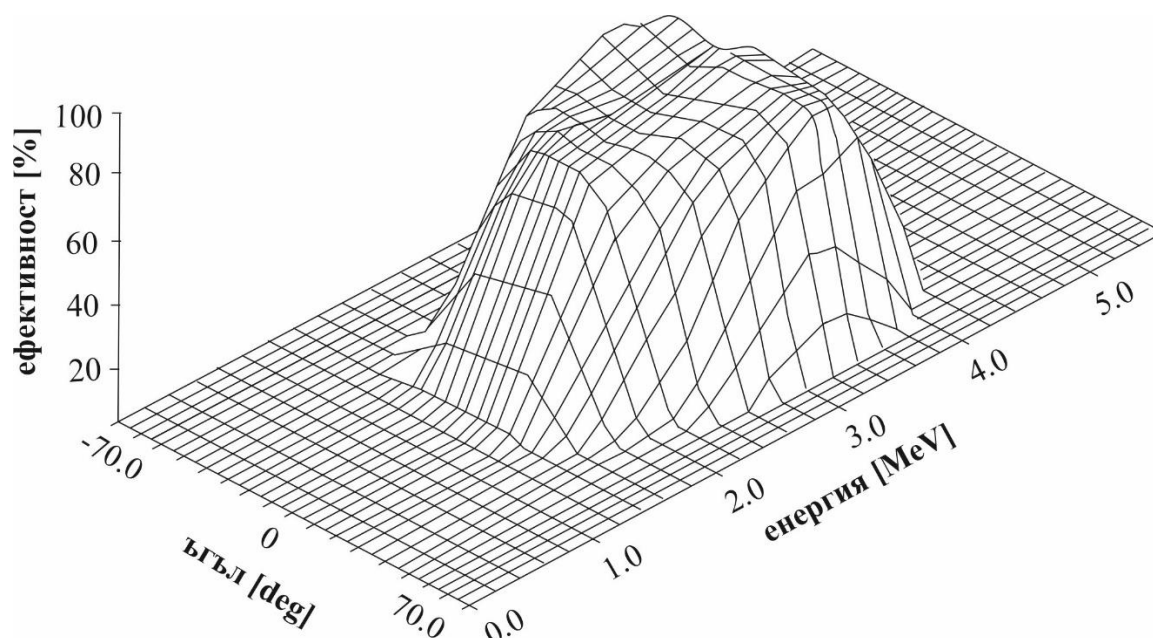
*таблицата е допълнена от автора в частта си за влагоустойчивост.

II.3.1 Пасивни диелектрични детектори на следи (трекови детектори)

Твърдотелните детектори на ядрено лъчение (SSNTD) се основават на свойствата на някои диелектрици да формират и запазват следа след преминаване през тях на тежка йонизирана частица. Това за първи път е забелязано от Young [43]. Благодарение на изследванията в лабораториите на Дженерал Електрик през 1960 те години този метод добива широка популярност [44]. В България този метод е бил използван при ядрени изследвания [45] и при геоложки изследвания за уранови находища [46].

При преминаване на тежки заредени частици през материали притежаващи свойства на SSNTD, те създават трайни дефекти в структурата му поради големите йонизационни загуби. Дефектите са с размери нанометри и могат да се наблюдават само с електронен микроскоп. След подходящо ецване с химичен разтвор, осигуряващ ерозия на материала по направление на следата, тези следи добиват характерна конична форма и увеличават размера си до няколко микрона като стават видими и под обикновен микроскоп.

Методът на SSNTD за измерване на радон във въздуха се използва в лабораторията по дозиметрия и лъчезащита на Софийския университет от началото на 90^{те} години, като първоначално се използват детектори Kodak – Pathe LR-115/type II. Преброяването на следите се извършва с оптичен микроскоп чрез преминала светлина. За да бъде създаден видим трек в този детектор, при условията на неговата последваща обработка е необходимо енергията и ъгъла на падане на α – частици да се намират в специфична за всеки вид детектори „област на чувствителност“ (фигура II.3) [47].

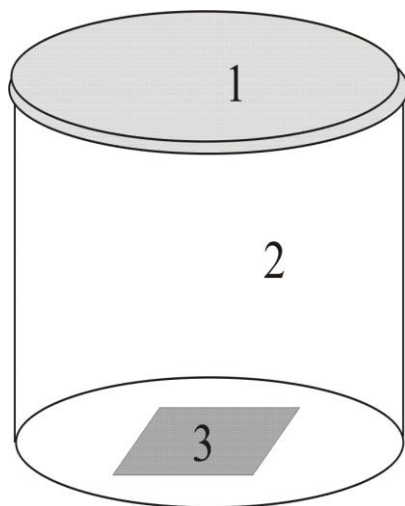


Фигура II.3. Енергийно ъглова диаграма на ефективността на регистрация на α – частици от Kodak Pathe LR-115 type II. Съставена по данни от [48].

II.3.2 Дифузионни камери с трекови детектори

Най-използваните детектори за кумулативни измервания на радон са предложените преди няколко десетилетия дифузионни камери [49,50]. Това се дължи на простото им устройство, ниска цена, надеждност при измерването. (фигура II.4.) Най общо тези детектори представляват обем, в който радонът прониква през дифузионна бариера (полимерно фолио, микроскопични отвори), на дъното на който има поставен SSNTD детектор.

Дифузионната бариера поставена на входа, има за задача да пропуска в обема на камерата по дифузионен път само ^{222}Rn , като същевременно задържа ^{220}Rn и дъщерните продукти на ^{222}Rn и ^{220}Rn . Дължината на дифузия се дава с израза $L_D = \sqrt{D/\lambda}$, където λ е константа на разпад, D -коефициент на дифузия на радон в съответния материал. От него се вижда, че влиянието на ^{220}Rn може да бъде елиминирано с подходящо избрана мембрана поради по-малката дължина на дифузия, обусловена от много по-голямата константа на разпад ($\lambda = \ln 2/T_{1/2}$) на ^{220}Rn по



Фигура II.4.

Дифузионна камера:

1. Полупропусклива мембрана.

2 Вътрешен обем на камерата.

3 SSNTD

[49,50]

отношение на тази на ^{222}Rn . Респективно $L_D(^{222}\text{Rn})$ се оказва с около 2 порядъка по-голяма от $L_D(^{220}\text{Rn})$. Това позволява чрез подходящ избор на мембрана, да се постигне висока пропускливост за ^{222}Rn и практически непропускливост за ^{220}Rn .

Твърдотелните детектори на следи SSNTD най-често са на базата на: Kodak-Pathe LR115; Макрофол (синтезиран на базата на бисфенол-А); CR-39 (известен като PADC-Поли Алил Дигликол Карбонат). След облъчване детекторите се подлагат на химична и / или електрохимична обработка (ецване). При това размерът на латентните следи от α - частиците се увеличава значително, така че те могат да бъдат изброени с прости оптични устройства. Броенето е визуално или автоматично.

Визуалното броене се извършва от оператор, като полето с трековете се наблюдава под микроскоп с подходящо увеличение. Визуалното броене може да се извършва и върху проектирано изображение [51,52].

Известни са следните методи за автоматично броене:

- Броене чрез сканиращ микроскоп.[53]
- Броене с оптичен микроскоп и свързана към него аналогова камера или CCD матрица. Трековият образ се обработва по специален алгоритъм [54].
- Искорово броене - тънкият SSNTD детектор се притиска между два електрода, единият от които е тънко алуминиево фолио. През всеки трек преминава еднократно искра, която се отчита, а фолиото на това място се разрушава [51,54,55,56].

- Интегрален фоточувствителен метод на броене - измерва се интегрално преминалата през трековете светлина [56,57].
- Метод на преминалите частици. Детекторът се облъчва с частици, които не биха преминали през него, ако няма трекове. Те ще преминат само през образуван трек [52,56].
- Метод на електролитната клетка - детекторът се поставя като мембрана в електролит с едващ разтвор. По неговото съпротивление може да се съди за плътността на следите [56,58].
- Метод на нарушеното пълно вътрешно отражение - колимирана светлина се въвежда в образеца и търпи пълно вътрешно отражение с изключение на местата с трекове. Плътността на следите се оценява фотометрично [59,60].
- Скенерен метод - използва се (комерсиален) скенер с достатъчна разделителна способност. Сканираният образ се обработва и следите се изброяват автоматично [61,62].

II.3.3 Дозиметри с активен въглен

Дозиметрите с активен въглен представляват отворена или дифузионно затворена камера, в която е поставен активен въглен [8]. След адсорбирането на радон от активният въглен, пробата се измерва гама спектрометрично или чрез точно сцинтилационно броене. Измерването се влияе от влажността, температурата, състава на активния въглен и не е подходящо за дълъг период от време.

II.3.4 Дозиметри с електретен детектор [64]

Състои се от камера с регистриращ елемент електрет и четящо устройство. По същество тези дозиметри са пасивен аналог на йонизационна камера (фигура II.5.). Поляризиращият електрет създава електрично поле в обема на камерата, което придава насочено движение на генерираните там йони. Под въздействие на йонизацията, предизвикана главно от α - частиците, електретът се разрежда.



Фигура II.5. Дозиметри с електретен детектор [63].

Степентта му на разряд (оценявана чрез измерване с четящото устройство), зависи от интегрираната по време на облъчване концентрация на радон.

В подземни условия неблагоприятно въздействие върху измерването (разреждането на електрета) има високата влажност и киселинната среда, получена от взривните газове. Освен това тези детектори са чувствителни към гама фон [64] и към торон [65].

II.3.5 Електронни интегриращи устройства

Представяват камера с полупроводников детектор (фигура II.6). Този елемент регистрира α - частиците, получени при разпадането на ^{222}Rn и ДПР. Броят регистрирани импулси за определено време е пропорционален на интегрираната по времето обемна концентрация на ^{222}Rn . Интервалът от времето за интегриране може да се избира, като обикновено е над едно денонощие.

Възможна е чувствителност и към торон. Няма рутинна процедура по калибрирането им. Не е ясно, как ще работи в условията на 100% влажност и конденз.



Фигура II.6 Електронно интегриращо устройство [66].

II.3.6 Монитори за непрекъснати измервания

Детекторите, които се използват в тези устройства могат да бъдат сцинтилационни камери, йонизационни камери, полупроводникови детектори. Измерванията им са квазинепрекъснати, като за време, определено от измерващия, те правят поредица от дискретни измервания. Данните се съхраняват в паметта на устройството и е възможна компютърната им обработка. Някои от тези устройства правят и алфа спектрометрични измервания, и могат да регистрират разделно ^{222}Rn и ^{220}Rn (RAD7, AlphaGUARD PQ2000 PRO Rn Tn). Основен недостатък е високата им цена, което ги прави неприложими при масови кумулативни измервания. Производителите не препоръчват използването им в условията на 100% влажност и конденз.

II.3.7 Поликарбонатен CD/DVD метод

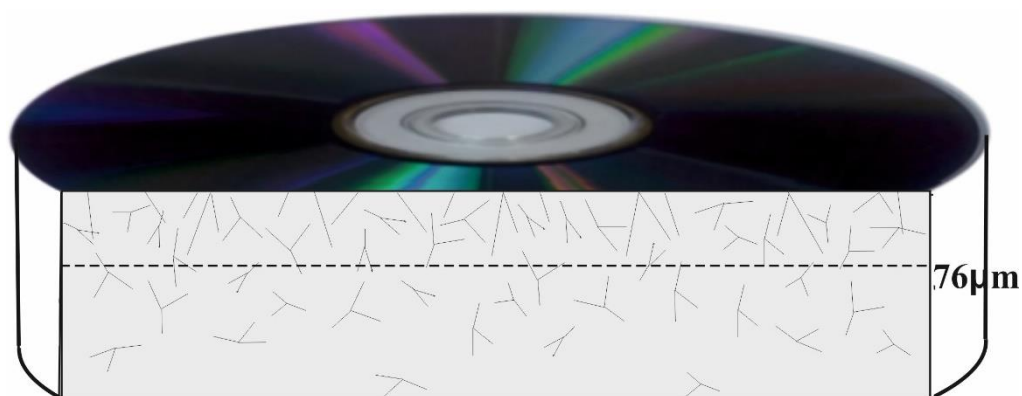
През 1999 г проф. Пресиянов формулира за първи път идеята да се използват абсорбционните свойства на поликарбоната за измерване на нивата на радон ^{222}Rn [33,34]. Първи експерименти в това направление са направени в университета Гент - Белгия [33,34]. Развитието на „поликарбонатния“ метод показва възможности за решаване на различни проблеми при измерването на радон и други радиоактивни благородни газове. Свойствата на бисфенол А поликарбонати (известни като Makrofol, Lexan и др.) като SSNTD са били известни отдавна [47]. А свойството им да абсорбират радон се е разглеждало като източник на грешки при измерването на радон [67].

Методът се основава на свойствата на поликарбонатния материал, от който са изработени всички CD/DVD дискове (фигура II.7). Те могат да абсорбират ^{222}Rn и притежават свойства на SSNTD за α - частици. Освободените при разпада α - частици формират трекове в този материал [68]. При поликарбонатния метод се съчетават абсорбционните свойства които има поликарбоната и трековите свойства на същите. Съществена роля играе и възможността за визуализация на следите чрез електрохимично ецване [69,70]. При този вид ецване се съчетава действието на химически реагент с приложено променливо електрично поле, при които размерите на следите от α - частици могат да бъдат уголемени до няколко десетки микрона и да могат да се наблюдават дори визуално (фигура II.8).

Процесите, протичащи при формирането на сигнал в поликарбоната са следните:

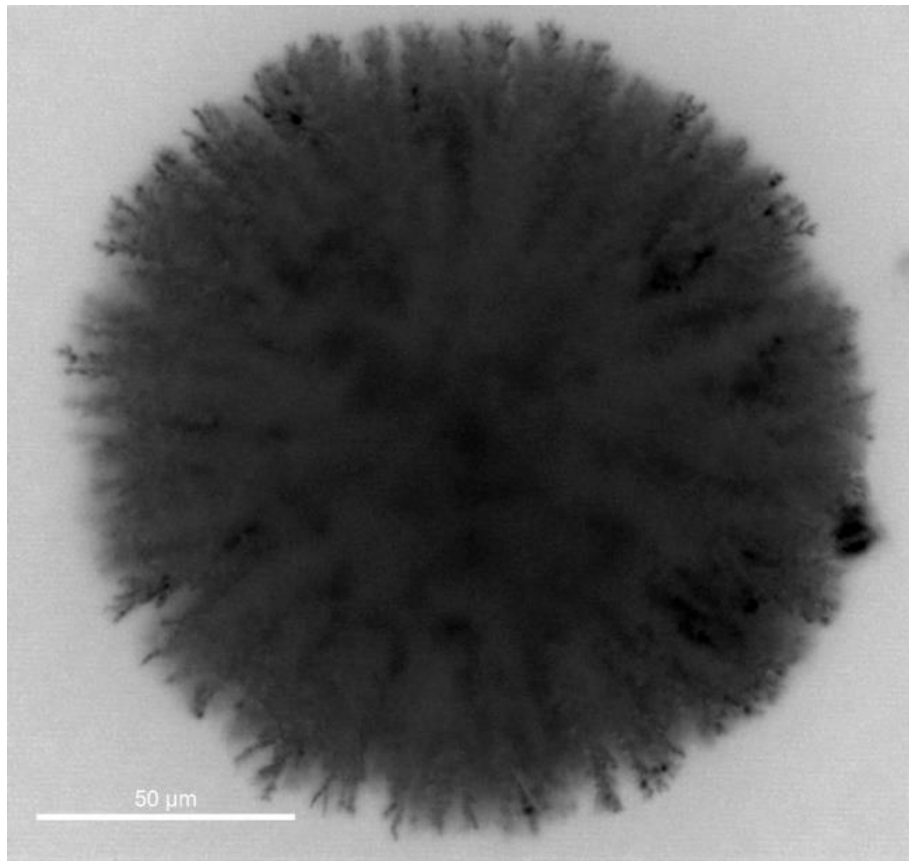
Атомите радон дифундират в дълбочина на материала. След тяхното разпадане те излъчват α - частица, която формира следа в материала, дъщерните продукти (^{218}Po и ^{214}Po) са също α - радиоактивни и също оставят следи в материала.

Следите в поликарбоната могат да се разделят на два типа:



Фигура II.7. Формиране на следи от α - частици в дълбочина на CD/DVD дискове. Дъщерните атоми остават неподвижни в поликарбоната, на достигнатото място при първоначалното разпадане на ^{222}Rn . Три α - частици излизат от една такава точка, тези на ^{222}Rn , ^{218}Po и ^{214}Po . На дълбочина $> 76 \mu\text{m}$, следите се дължат само на α - частици от абсорбираният ^{222}Rn и неговите дъщерни продукти (^{218}Po , ^{214}Pb). Влиянието на отложени по повърхността атоми, както и това на повърхностни дефекти на дълбочина $> 76 \mu\text{m}$ е елиминирано [33,34,68].

- ✓ Следи, получени от външни атоми и такива намиращи се на повърхността на материала заедно с техните дъщерни продукти. Те могат да формират следи до дълбочина по – малка от $76 \mu\text{m}$. (толкова е пробегът на $8,78 \text{ MeV}$ α - частиците на ^{212}Po в поликарбонатния материал.
- ✓ Следи от атоми на ^{222}Rn , постъпили след дифузия в материала и техните дъщерни продукти. Тези следи могат да се наблюдават и на дълбочини по – големи от $76 \mu\text{m}$.



Фигура II.8. Фотография на електрохимично ецван трек с типичната му фрактална структура.

II.4 Необходимост от ретроспективни измервания на радон

Белодробният рак е заболяване, което не се развива непосредствено след облъчването, а е необходимо да изминат години преди клиничните прояви. Връзката между облъчването от радон и риска за развитието на рак се установява чрез епидемиологични оценки.

Епидемиологичните оценки до момента се основават на проучването на две групи:

- Подземни миньори.
- Населението.

Изводите, получени от изследванията при миньорите, не могат да се екстраполират директно върху населението. Тяхната група се състои почти изцяло от мъже над 18 години, те работят при специфични подземни условия и са подложени на допълнителни рискови фактори там. През 90 - те години бяха направени редица нови проучвания за да се постигнат по - преки оценки на риска от радон за населението [7,8,13]. Поради големите вариации на радоновата и свързаната с нея концентрации на дъщерни продукти, моментното измерване е много несигурно. Ето защо при такива измервания се предпочитат интегриращите във времето пасивни детектори. Времето за експозиция при тези измервания са от няколко месеца до една година. Повечето флуктуации при тези измервания се изглаждат. При тези проучвания основният проблем е, че се използват проспективни измервания, а историята на излагане на радон остава неизвестна поради липсата на информация. При това положение резултатите, които се правят в момента се екстраполират ретроспективно. Такова екстраполиране обаче е общо казано некоректно, тъй като не отчита възможни промени в нивата на радон през минали години. Ето защо интерес представляват методи за ретроспективни измервания, даващи информация за интегрираната по време концентрация на радон „назад във времето“.

II.4.1 Методи за ретроспективни измервания в жилища

Латентният период за развитие на белодробен рак е от пет, до десетки години. Следователно връзката между риска от неговото развитие трябва да се търси с облъчването, което е получил даден индивид през целия този период. Методите за извършване на такива измервания на радоновото облъчване назад във времето се наричат ретроспективни. За тази цел се използва така наречения „обект свидетел“.

Обикновено това са предмети, които човек носи постоянно със себе си: очила и др. или такива, които постоянно се намират в жилището му и които човек взема със себе си при преместване в ново жилище: мебели, рамки, CD/DVD. Предложените до момента методи за ретроспективно измерване на ^{222}Rn са:

- метод на имплантираното в стъклото ^{210}Pb ,
- метод на обемните уловки,
- метод на лещите за очила,
- CD/DVD метод.

Оказва се, че по точност CD/DVD методът значително превъзхожда останалите методи за ретроспективни измервания [71].

Глава III

Компакт дисков метод за кумулативно измерване на радон и торон

Основната идея на метода е да се съчетаят абсорбционните свойства на някои поликарбонати на базата на бисфенол - А, Makrofol®, Makrolon®, Lexan®, Iupilon®) към радон и техните трекови свойства като SSNTD. Тези материали са основни при изработката на CD/DVD дискове, а напоследък тяхното приложение се разширява все повече. На тази база през 2001г. е предложен нов метод за ретроспективни измервания посредством CD/DVD [35].

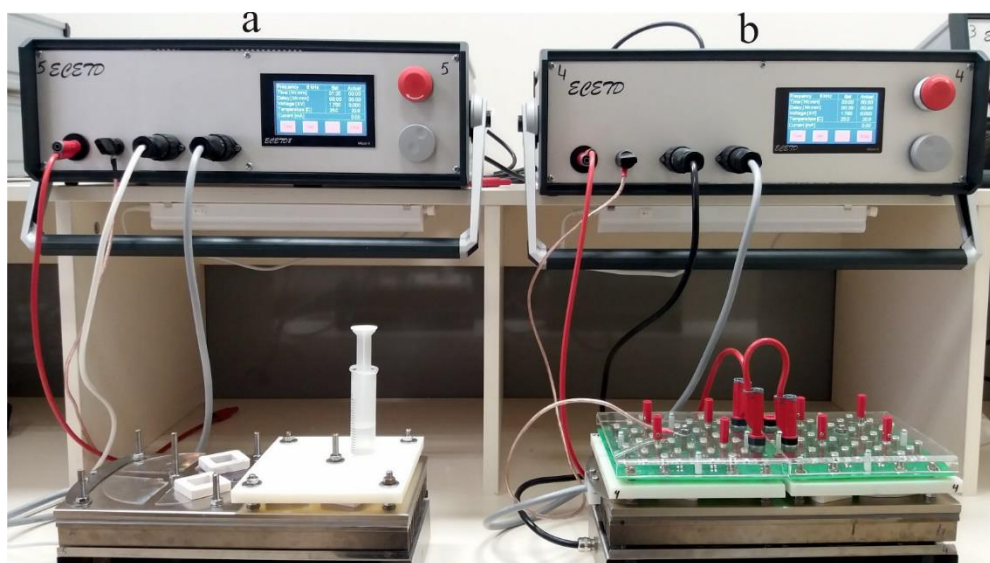
Сигналът получен в тези дискове се дължи на абсорбираният радон през целия период на тяхното съхранение. Формираният сигнал пропорционален на интегрираната обемна активност на ^{222}Rn отново трябва да се търси на дълбочина $>76\mu\text{m}$. Обработката им е аналогична на вече изложената. Този метод позволява да се извлича събраната вече от домашните дискове информация.

III.1. Кумулативно измерване на радон ^{222}Rn

Както се вижда от фигура II.7 трековете, формирани на дълбочина под $76\mu\text{m}$ се дължат само на абсорбирания ^{222}Rn и неговите ДПР. За да се стигне до дълбочината, където се отлагат трекове само от дифундирали в материала атоми на ^{222}Rn и техните продукти на разпадане, е необходимо първоначално да се отстрани повърхностен слой от поне $76\mu\text{m}$. Това се прави чрез химично преецване. Под тази дълбочина наличните трекове се обработват електрохимически (фигура II.7). Основните етапи са следните:

III.1.1 Химично преецване CPE

Това е процес, при който се премахва повърхностния слой на CD/DVD с желаната дебелина (фигура III.1.а). Разтворът за CPE се подготвя от КОН, вода и метанол в масово съотношение 1:0.937:0.702, като към предварително разтворената КОН и вода се добавя метиловия алкохол непосредствено преди всяко преецване. Процесът протича при 30°C. Дълбочината на ецване се контролира от продължителността му (фигура III.2.), а действителната му стойност се установява с измерване с микрометър с точност 1 μm (фигура III.3).

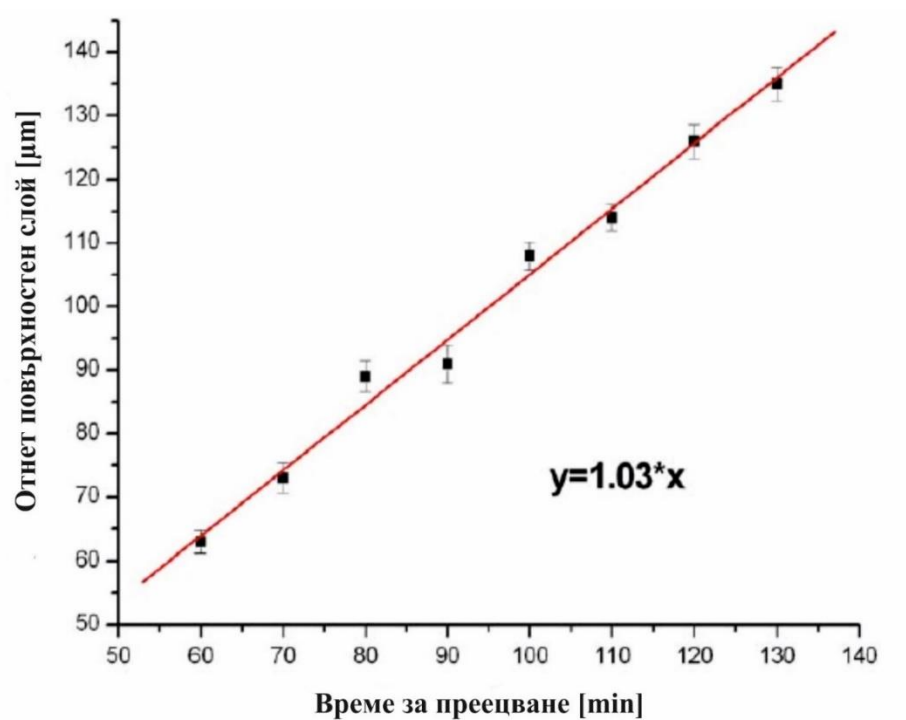


Фигура III.1. Етапи на обработка на CD/DVD дискове

а) CPE - химическо преецване, за да бъде постигната необходимата дълбочина;

б) ECE - електрохимично ецване.

~ 25 ~



Фигура III.2. Зависимост на дебелината на премахнатия слой от времето за преецване. (Скоростта на преецване е около $1 \mu\text{m} / \text{min}$) [72].



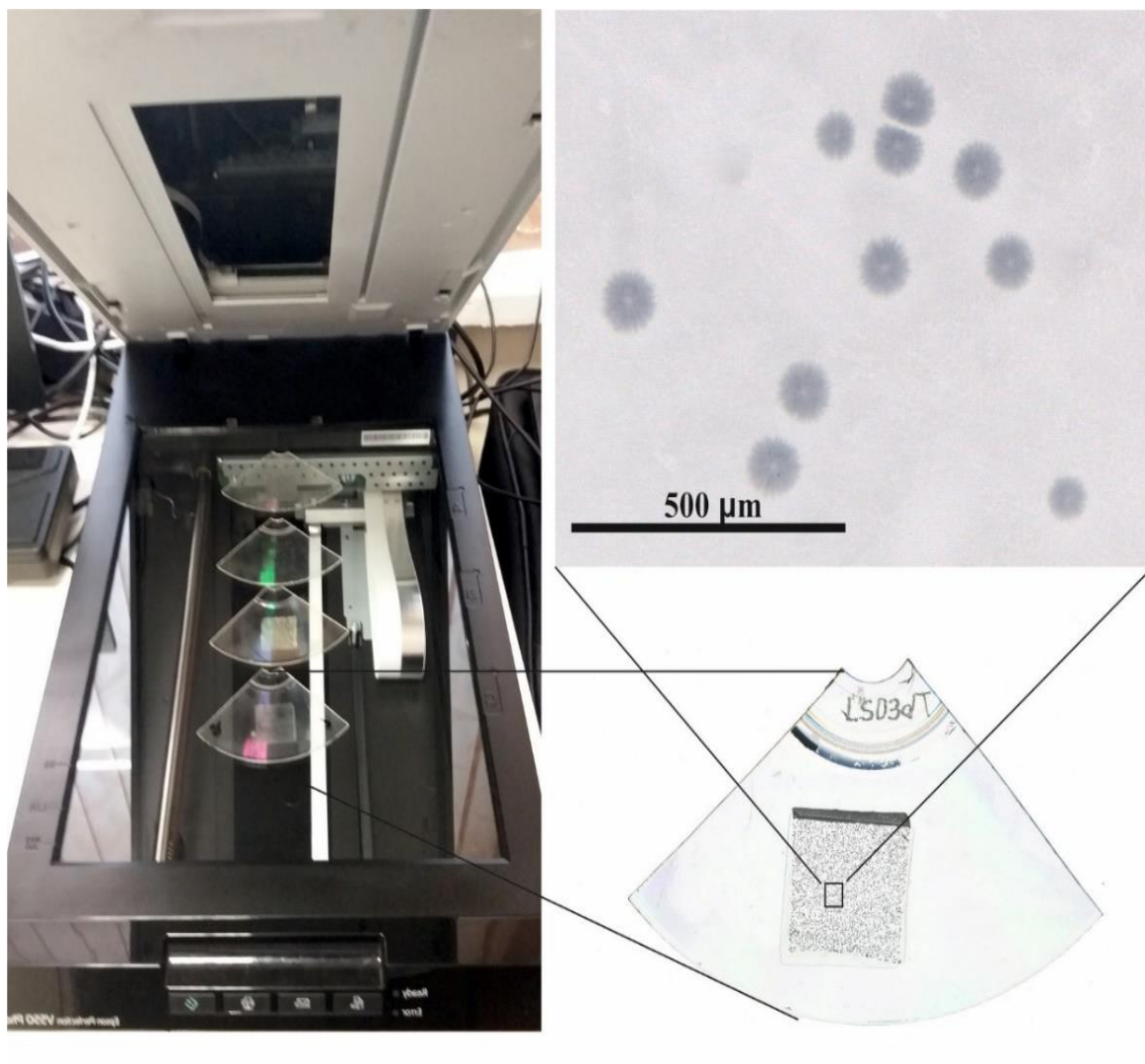
Фигура III.3. Контрол на дълбочината на ецване с микрометър с точност $1 \mu\text{m}$.

III.1.2 Електрохимично ецване ЕСЕ и изброяване на трековете

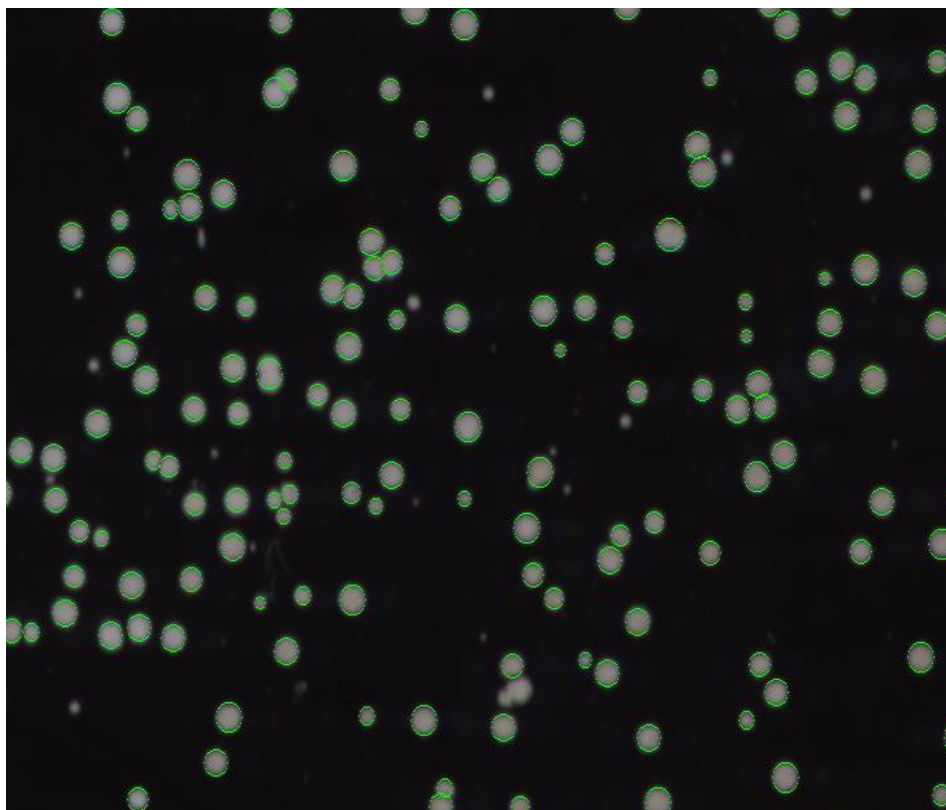
Латентните следи причинени от α - частици са с размер от няколко nm. За да станат достатъчно големи и за да могат да се изброяват лесно, те се обработват чрез електрохимично ецване с разтвор КОН вода етанол в съотношение (масово) 1:2,204:0,519.

Ефективното напрежение се съобразява с дебелината на диска, така че интензитетът на прилаганото електрично поле е 3kV/mm, а честотата която използваме е 6 kHz. Продължителността на процеса е 3 часа и се извършва при 25°C. Този процес е предхождан от преецване с продължителност 30 min. През това време разтворът е налят в силиконовите маски, температурата е установена, но не е подадено високото напрежение. Това е време, през което повърхността се подготвя за химичното ецване и се премахват някои дефекти по повърхността (фигура III.1.б).

В резултат на електрохимичната обработка първоначалният трек, увеличава своя напречен размер като придобива характерна фрактална структура (фигура II.8.). След електрохимичното ецване оформените трекове се изброяват при наблюдение под микроскоп или на скенер (фигура III.4.) с последваща компютърна обработка [73]. При нея, чрез различни цифрови филтри, софтуерът осигурява разпознаване на образа на трека и отделянето му от различните дефекти, които са получени по повърхността на диска [73]. Скенерът трябва да може да работи на преминаваща светлина и да притежава достатъчно добра разделителна способност. Изображението се запазва в 24 битов формат, а използваната компютърна програма за изброяване на трековете е „DG-track“. Програмата позволява визуален контрол на изброените трекове, като негативното копие на изображението върху всеки изброен трек се маркира с цветен кръг (фигура III.5.).



Фигура III.4. Сканиране на трековете с последващо компютърно изброяване .



Фигура III.5. Визуализация на компютърното изброяване в негативен образ. Трековете които са заградени с цветен кръг, са изброени от програмата.

Така може да се прави визуален контрол на степента на компютърното изброяване. Гранична трекова плътност, която се постига по този начин е до 2000 cm^{-2} . За 5 годишен диск това съответства на експозиция от 2000 Bq m^{-3} . Граничната плътност може да бъде и по-голяма (до 5000 cm^{-2}), но тогава изброяването трябва да бъде визуално (под микроскоп), за да могат да се изброят трековете, които се припокриват. При голяма плътност на трековете ($>3 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-2}$) има сведения, че част от трековете не се визуализират поради локално намаляване на електричното поле в следствие на близките трекове [74,75,76].

III.1.3 Определяне на интегрираната концентрация на ^{222}Rn

Налице е почти перфектна корелация между плътност на трековете на дълбочина по - голяма от 76μm и интегрираната концентрация на ^{222}Rn (фигура III.6.).

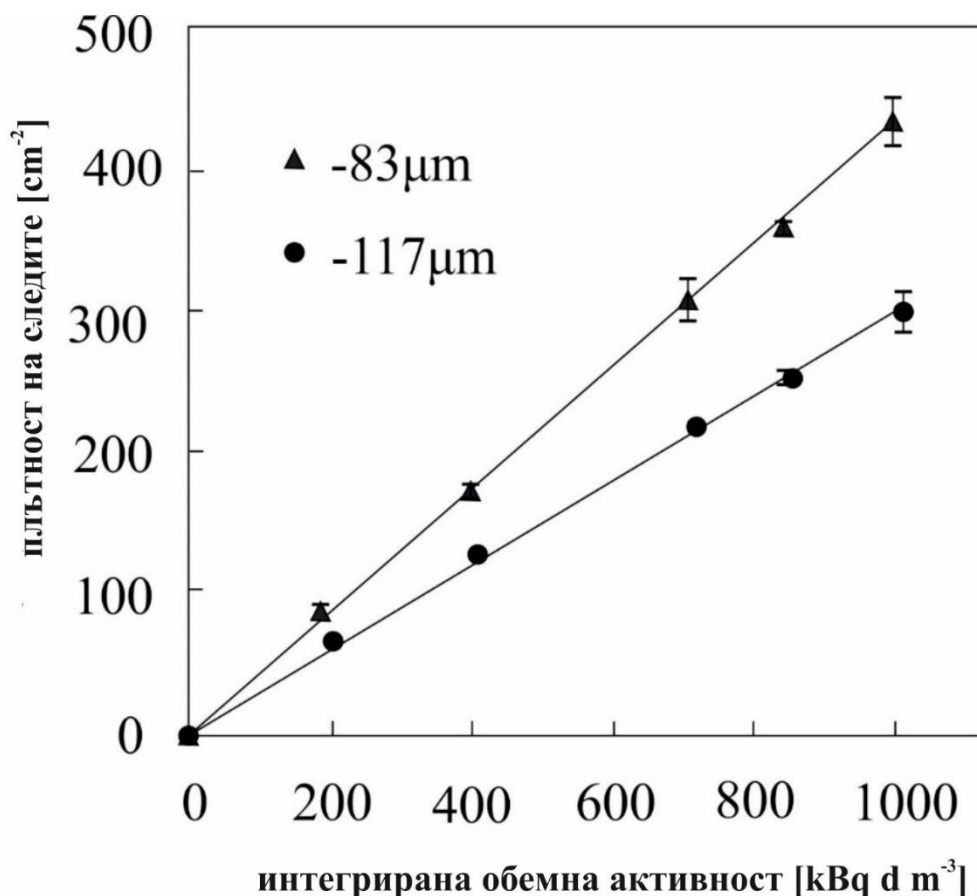
За да могат да се сравняват изброените трекове на образци, облъчвани с различни нива на интегрирана във времето обемна активност на радона, се въвежда **калибровъчен коефициент CF** , който ще зависи от дълбочината (d) на изброените трекове и се изразява по формулата:

$$CF(d) = \frac{n_{net}(d)}{I_V}, \quad (1)$$

където $n_{net}(d)$ е чистата плътност на трековете на дълбочина d (след изваждане на фоновата плътност на тази дълбочина), а I_V е интегрираната по времето обемна активност, при която е извършено облъчването

$$I_V = \int_0^{t_{exp}} C_A(t) dt, \quad (2)$$

t_{exp} - времето на облъчване, $C_A(t)$ -обемната активност на радона през това време.



Фигура III.6. Зависимост между плътността на трековете на две дълбочини под повърхността на поликарбоната и интегрираната във времето концентрация на ^{222}Rn , съгласно [35].

III.2 Теоретичен модел

От Пресиянов е разработен теоретичен модел подходящ за електрохимично ецване на поликарбонатни детектори, от материал идентичен с този от който се правят CD/DVD [77]. Той се базира на обемното разпределение на абсорбираните в поликарбонатен материал на ^{222}Rn и ДПР и на плътността на трековете които се получават като резултат от това. Тук ще разгледаме този модел в частта важна за разгледаните в дисертацията приложения.

Численото моделиране се състои от две стъпки:

- Моделиране на разпределението на абсорбираните ^{222}Rn и ДПР.

- Използвайки резултата от предишните стъпки, се моделира плътността на следите в зависимост от интегралната ^{222}Rn концентрация, вземайки в предвид особеностите на ЕСЕ процес. Като резултат теоретично се пресмята CF .

След като атом на ^{222}Rn от въздуха бъде захванат от матрицата на поликарбонат, по нататъшното му поведение е подчинено на дифузията. От практическа гледна точка нашият интерес е съсредоточен върху пластини от Makrofol, парчета от CD и DVD, чиито дебелини са много по малки от техните повърхностни размери. В този случай, разпределението на радон в дълбочина може да бъде описано математично като едномерна дифузионна задача, посредством (както е показано в [77]) уравнението:

$$D \frac{d^2 C_1}{dx^2} - \lambda C_1 = 0, \quad (3)$$

където C_1 е интегрираната по времето концентрация на ^{222}Rn атоми в поликарбоната, λ е константа на разпад на ^{222}Rn , x е координатата по оста x , чието начало е в едната (условно „предна“) повърхност и е насочена перпендикулярно към другата („задна“) повърхност, а D е дифузият коефициент на атомите на ^{222}Rn в поликарбонатния материал.

Уравнението (3) е с гранични условия $C_1(0) = C_1(L) = KC$ където L е дебелината на пластината. C е интегрираната по времето концентрация на ^{222}Rn във въздуха, а K е коефициентът на разпределение (безразмерна величина характеризираща разтворимостта) на ^{222}Rn от въздуха в поликарбонатния материал [78]. Решението на тази задача е [77]:

$$C_1(x) = KC \left[A \exp\left(-\frac{x}{L_D}\right) + B \exp\left(\frac{x}{L_D}\right) \right], \quad (4)$$

където $L_D = \sqrt{D/\lambda}$ е дифузната дължина на ^{222}Rn в поликарбонатния материал и:

$$A = \frac{\exp\left(\frac{L}{L_D}\right) - 1}{\exp\left(\frac{L}{L_D}\right) - \exp\left(-\frac{L}{L_D}\right)}, \quad (5)$$

$$B = \frac{1 - \exp\left(-\frac{L}{L_D}\right)}{\exp\left(\frac{L}{L_D}\right) - \exp\left(-\frac{L}{L_D}\right)}.$$

За образци от CD/DVD за които $L \gg L_D$ разпределението близо до повърхността се опростява до експонентата:

$$C_1(x) = KC \exp\left(-\frac{x}{L_D}\right). \quad (6)$$

Това е в много добро съответствие с експериментално измерено дълбочинно разпределение на концентрацията в CD-та [79].

III.2.1 Моделиране на CF

Моделирането на детекторните свойства включва и математическо моделиране на CF. Това моделиране е изложено в детайли в [77,81]. Крайните резултати от това моделиране са:

$$CF = Q \left(A \exp\left(-\frac{x}{L_D}\right) + B \exp\left(\frac{x}{L_D}\right) \right) \varepsilon(U, h), \quad (7)$$

където Q е величина отразяваща влиянието на „геометрията на източника“ в обема на пластината върху резултата за CF. Безразмерната функция $\varepsilon(U, h)$ отразява ЕСЕ ефективността за ецване на трековете при различни електрични полета. Тази

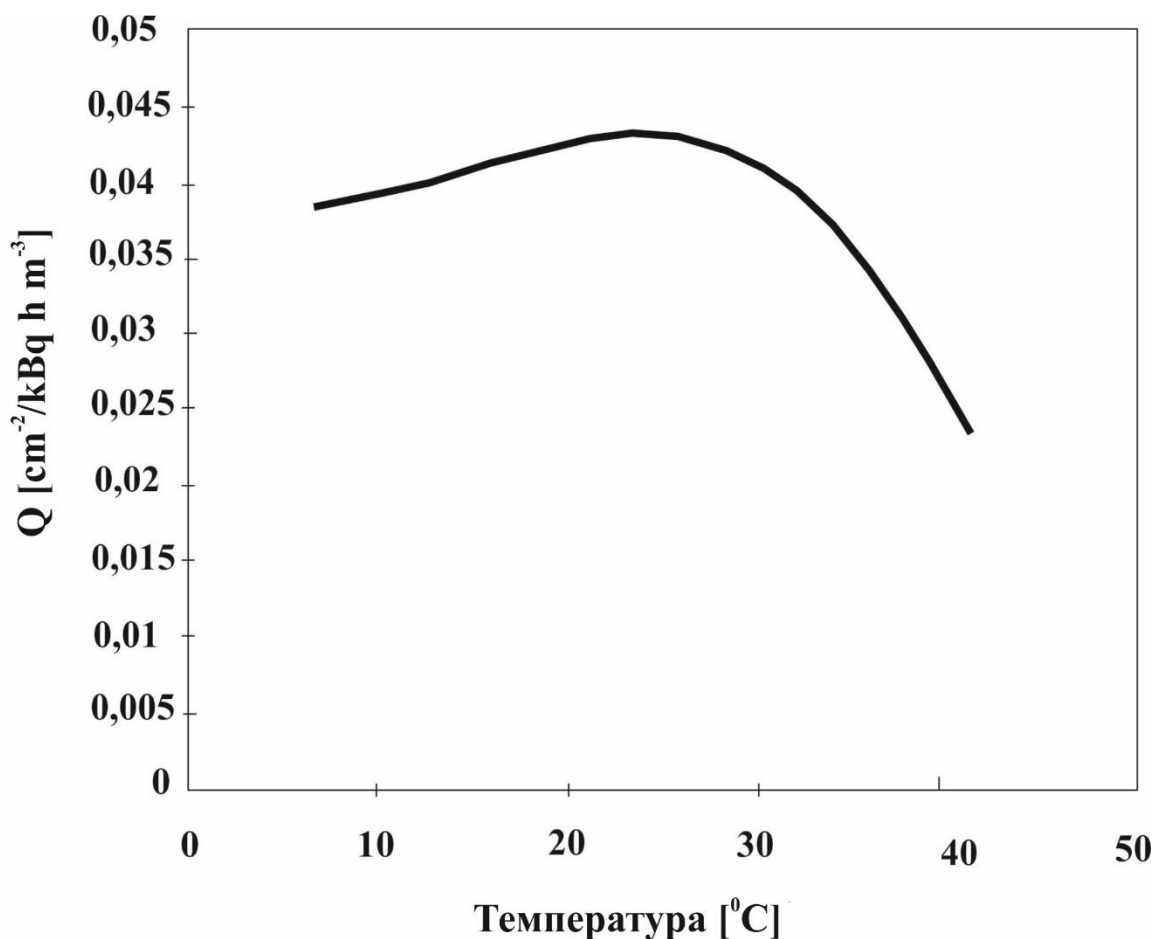
зависимост е изучена от De Vos [80]. В следствие на неговите резултати функцията може да бъде записана във вида [77]:

$$\varepsilon(U, h) = 5.7638 \left(\frac{h}{U} \right)^2 - 9.9644 \left(\frac{h}{U} \right) + 3.921. \quad (8)$$

Тук $h(\mu m)$ е дебелината на детектора, а $U(V)$ е ефективната стойност на приложеното напрежение. Ефективността е нормирана така, че $\varepsilon(800V, 300\mu m) = 1$. Зависимостта от честотата не е показана, тъй като в използваният при различни ЕСЕ генератори интервал ($2 \div 6\text{kHz}$) тя е слаба [69]. Мерната единица на този параметър, а оттам и на CF е дължина (и е μm ако L_D е в μm). Можем да използваме следната зависимост за да изразим Q и CF в единици в които те се използват по-често:

$$CF \left[\frac{cm^{-2}}{kBq \cdot h \cdot m^{-3}} \right] = \frac{CF[\mu m]}{2778}, \text{ аналогично за } Q. \quad (9)$$

Значенията на K и L_D за различни температури са определени в [77]. Използвайки налични експериментални данни. Поради тяхната зависимост от температурата, има такава зависимост от температурата и на Q . Използвайки интерполирани значения на K , L_D и J са моделирани стойностите на Q за различни температури в температурния интервал $5 - 40^\circ\text{C}$. Температурната зависимост на Q е показана на фигура III.7.



Фигура III.7. Температурната зависимост на параметъра Q, съгласно [81].

От уравнение 7 се вижда, че CF също зависи от температурата чрез Q и L_D .

Чрез компютърно моделиране са пресметнати теоретичните стойности за CF използвайки следните параметри:

Температура по време на облъчването.

Дебелина на образца

Дебелина на отнетия слой.

Приложеното ефективно напрежение при ЕСЕ ецване.

Теоретичните стойности са сравнени с експерименталните в таблица III.1. [77].
 Както се вижда резултатите са в добро съответствие. Експерименталните стойности съответстват на теоретичните в границите на $< 10\%$. Теоретичният модел може да бъде използван за оптимизиране на измервания и други практични решения.

Таблица III.1. Сравнение между експериментално намерените и теоретично пресметнати стойности на CF . Неопределеностат е едно стандартно отклонение [77].

Поликарбонатен образец	Дълбочина на ЕСЕ (μm)	CF -експериментална ($\text{cm}^{-2}/\text{kBq h m}^{-3}$)	CF -модел ($\text{cm}^{-2}/\text{kBq h m}^{-3}$)
Макроfol, дебелина 300 μm (облъчено при 19,5 ⁰ C ЕСЕ при 3,64kV _{eff} /mm)	83 $\pm$ 3	0,018 $\pm$ 0,001	0,019 $\pm$ 0,002
CD (облъчено при 19,5 ⁰ C ЕСЕ при 3,52 kV _{eff} /mm)	83 $\pm$ 3	0,0137 $\pm$ 0,001	0,018 $\pm$ 0,002
CD(облъчено при 20,5 ⁰ C ЕСЕ при 3,22 kV _{eff} /mm)	77 $\pm$ 5	0,019 $\pm$ 0,003	0,018 $\pm$ 0,002

Най - важното развитие на този метод е за ретроспективни измервания на ²²²Rn, използвайки CD и DVD дискове, съхранявани в жилища, превърнали се по този начин в дозиметри с формиран на тях сигнал за периода на съхраняването им. Задача на дисертацията е обаче развитието на този метод за кумулативни измервания на ²²²Rn в подземни условия - минни галерии и пещери. Основните предизвикателства тук са свързани с влиянието на температура, влага, включително конденз на повърхността, намокряне на дискове от пръскащи води, взривни вълни и пр.

III.3 Влияние на различните фактори върху трековата плътност на дълбочина $>76\mu\text{m}$

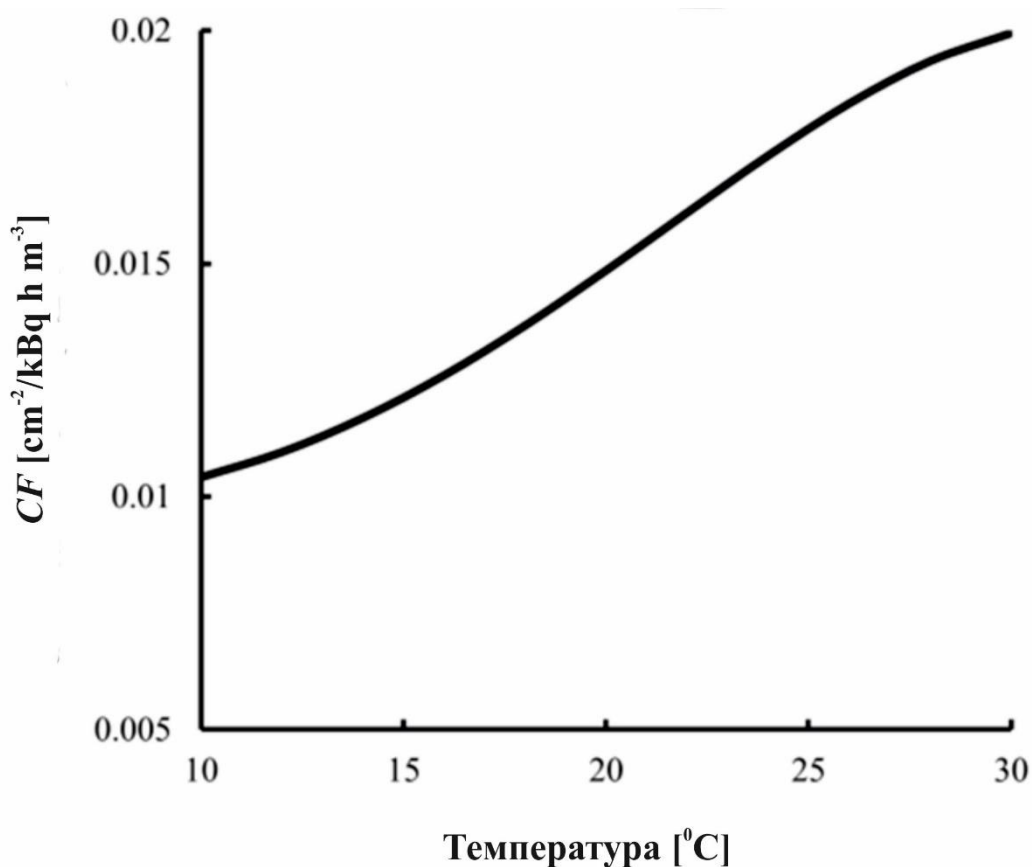
В рамките на разглежданите периоди (години) поликарбонатния материал не си променя трековите свойства и не показва забележим фединг [82, 83].

От факторите на околната среда, които са изследвани, резултатите са следните:

- Промяна на атмосферното налягане в границите на (57 kPa, 148 kPa) не влияе върху сигнала [79].
- Влажност в границите от 0% до 100% не влияе върху плътността на трековете [79]. В процеса на работата ни бяха направени допълнителни експерименти в тази насока, за да се оцени влиянието на намокряне на повърхността на диска.
- Не е установено влиянието на прах, отложен на повърхността на дисковете, върху плътността на трековете на тази дълбочина. При излагане на цигарен дим до състояние на пожълтяване на диска, се наблюдава занижение на плътността с около 11%. Вероятно това занижение се дължи на появата на допълнителен екраниращ слой върху диска [82].
- Значително влияние върху плътността на трековете на тази дълбочина оказва температурата. Тази температурна зависимост може да бъде отразена чрез температурната зависимост на калибровъчния фактор. До сега тази зависимост е изследвана в температурния интервал 2-40⁰C, което покрива случаите от практиката ни.

III.4. Калибриране

Факторът, който може да окаже съществено влияние върху измерването със CD/DVD, е температурата. Под земята тя може да варира в различните галерии, но за едно постоянно работно място тя е относително постоянна във времето. Този факт улеснява отчитането на нейното влияние чрез коригиране на коефициента на калибриране CF към съответната температура в подземния обект.



Фигура III.8. Температурна зависимост на калибровъчния фактор.

Получената чрез моделиране теоретична температурна зависимост на калибровъчния фактор [77] позволява да напишем компютърен код, който достатъчно точно (с грешка под 10%) ни дава стойностите на CF за всяка конкретна температура в широк диапазон (фигура III.8) [92].

Калибрирането на детектори (при стайна температура) се извършва по следния алгоритъм:

- От партида детектори (CD/DVD), подготвени за поставяне в подземни обекти, бяха отделяни 10 броя детектори, с помощта на които беше извършено еталониране (априори) при определена температура.
- Фоновата плътност на трековете беше определена като 10 броя детектори бяха оставени необлъчени, след което същите бяха обработени заедно с облъчените детектори. Техният сигнал беше изваждан като фонов от показанията на облъчените детектори.

За облъчването на детекторите беше използвана установка, показана схематично на фигура.III.9. Източник на ^{222}Rn е ^{226}Ra с активност $104 \pm 1,5\%$ kBq (производство на. 'Inspectorata for ionizing radiation, Radiova 1, 10200 Prague 10 Cz'. Радоновата камера (б) може да е свързана в отворена система за облъчващата среда от въздух и радон, както и да бъде херметично затворена след вкарване на радон в нея. Облъчваните детектори са поставени в радонова камера с обем 50l, като е възможно тя да бъде заменена от съд с обем 10l. Концентрацията на радон по време на експозицията бе измервана с референтен радонов монитор AlphaGUARD PQ 2000 Pro (Genitron GmbH, Germany).

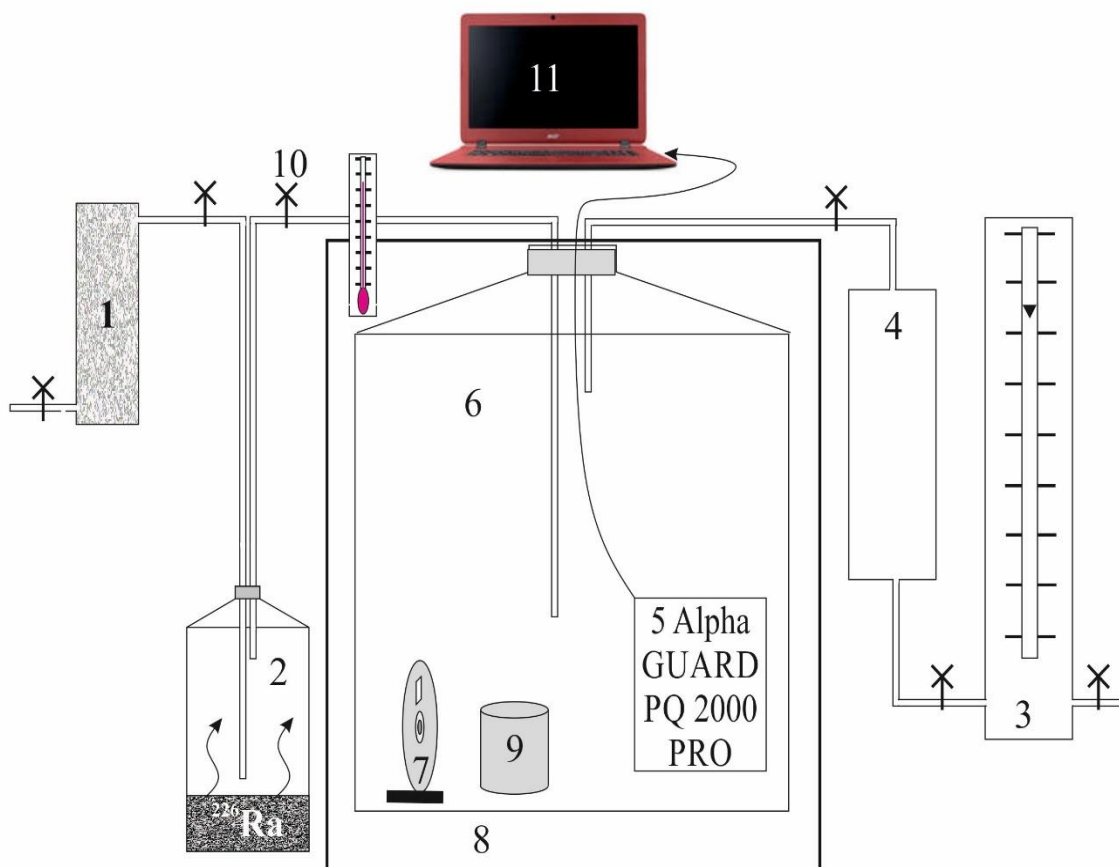
Системата може да работи в два режима:

1. Режим на постоянна активност в нея.

Постига се в отворен режим когато помпата се остави да работи по време на цялото облъчване при постоянен дебит, съобразен с желаната концентрация на радон.

2. Режим на еднократно зареждане с радон.

При него след първоначалното зареждане с радиоактивния газ, крановете 10 се затварят и системата се оставя херметизирана. Нивото на радон в нея намалява съгласно закона за радиоактивното разпадане (евентуално с корекция заради евентуални слаби течове на радон от системата). Калибриранията за целите на дисертацията бяха извършени при този режим на облъчване.



Фигура III.9. Схема на опитната постановка за калибриране на съставните детектори за подземни обекти. 1. Изсушител. 2. Източник на ^{222}Rn (Inspectorata for ionizing radiation, Radiova 1, 10200 Prague 10 Cz) 104,5 kBq, 3. Ротаметър, 4. Помпа, 5. Радонов монитор AlphaGUARD PQ 2000 PRO (Genitron GmbH Germany), 6. Радонова камера, 7. CD/DVD - детектор, 8. Термостат, в който се намира радоновата камера 9. Дифузионна камера, 10. Кранове, позволяващи херметично прекъсване на връзката между отделните компоненти. 11. Компютър, записващ постъпващите данни от радоновия монитор.

III.4.1 Работа на системата при постоянна активност на радон

След свързване и включване на помпата активността на радона в първоначално чистата радонова камера се променя по начин описан в изрази:

$$A(t) = \frac{\lambda E A_0 V}{Q} \left(1 - e^{-(\lambda + \frac{Q}{V})t} \right), \quad (10)$$

където λ е константата на радиоактивно разпадане на ^{222}Rn ; A_0 е активността на ^{226}Ra ; E е еманационната способност на радоновия източник (степената на освобождаване на радонови атоми спрямо общо генерираните атоми); V е обемът на радоновата камера, Q е дебита на въздуха. Останалите обеми на системата не се отчитат, тъй като техният общ обем е пренебрежим спрямо обема на радоновата камера. След достатъчно дълго време, за което експоненциалният член стане пренебрежимо малък в системата настъпва равновесие. Тъй като в практиката $\lambda \ll Q/V$, времето за настъпване на равновесие t_{eq} се определя по критерия:

$$t_{eq} \gg \frac{V}{Q}. \quad (11)$$

Равновесната обемна активност ($C_A = A/V$) на радона тогава ще бъде:

$$C_A = \frac{\lambda E A_0}{Q}. \quad (12)$$

Радоновата активност в системата се контролира по два независими начина:

- чрез задаване на постоянен дебит на помпата и периодичен контрол на този дебит с ротаметъра.

- чрез постоянно измерване с радоновия монитор на радоновото ниво в облъчвателната камера и извършване на автоматичен запис през определено време (10 min) в компютър.

III.4.2 Работа при затворена система за облъчване от радон

В някои случаи не се налага да се работи при отворен източник на радон. Тогава след като се вкара определено количество ^{222}Rn , източникът се затваря и активността в обема намалява според закона за радиоактивното разпадане (стига обемът да е херметично затворен).

След облъчване, дисковете се оставят при ниски нива на радон в продължение на около две седмици. През това време, натрупаната активност в диска намалява поради радиоактивния разпад и десорбцията на радона.

Нетната плътност се получава като от установената плътност на трековете се изважда фона.

При извършване на предварително планирани кумулативни измервания, от общата партида дискове се изваждат произволно 10 броя, които се облъчват и се обработват предварително като се определя среден калибровъчен фактор за тази партида.

III.4.3 Фон

За проучване на фоновия сигнал, с който дисковете излизат от магазина са използвани 19 диска от различни фирми. Средната стойност получена от тях на дълбочина $80\mu\text{m}$ е $6,3 \pm 2,4 \text{ cm}^{-2}$ [84,85].

При извършване на предварително планирани кумулативни измервания, от общата партида дискове се изваждат произволно 10 броя, които се обработват предварително и се определя фона на тази партида. Същото количество дискове се подлагат и на еталониране при нива близки на очакваните.

Тъй като основното приложение на CD/DVD метода до момента е за ретроспективни измервания, ще направим кратък обзор на калибрирането при ретроспективни измервания.

III.5 Особености на калибрирането при ретроспективни измервания

При ретроспективните измервания се работи с дискове от различни производители. Основен въпрос при тези измервания е доколко достоверни ще бъдат резултатите при тях. Основно предимство при този метод е, че дискът който се изследва, може да бъде калибриран индивидуално **a posteriori** [72]. Парче от диска се дооблъчва в лабораторни условия при известна интегрирана концентрация на радон. След което двете части на диска се обработват едновременно и по разликата в сигнала на дооблъчената и другата част се определя индивидуален CF .

При априорното калибриране нетната плътност се получава като от установената плътност на трековете се изважда фона и чистия сигнал n се дели на кумулираната концентрация на радон по време на облъчването I_{ref} .

$$CF_{st} = \frac{n}{I_{ref}}. \quad (13)$$

При апостериорното калибриране нетната плътност Δn се получава, като от плътността на допълнително облъченото парче от диска, се извади плътността на необлъчено парче от диска, редуцирани към една и съща дълбочина.

$$CF_{a\ posteriori} = \frac{\Delta n}{I_{ref}}. \quad (14)$$

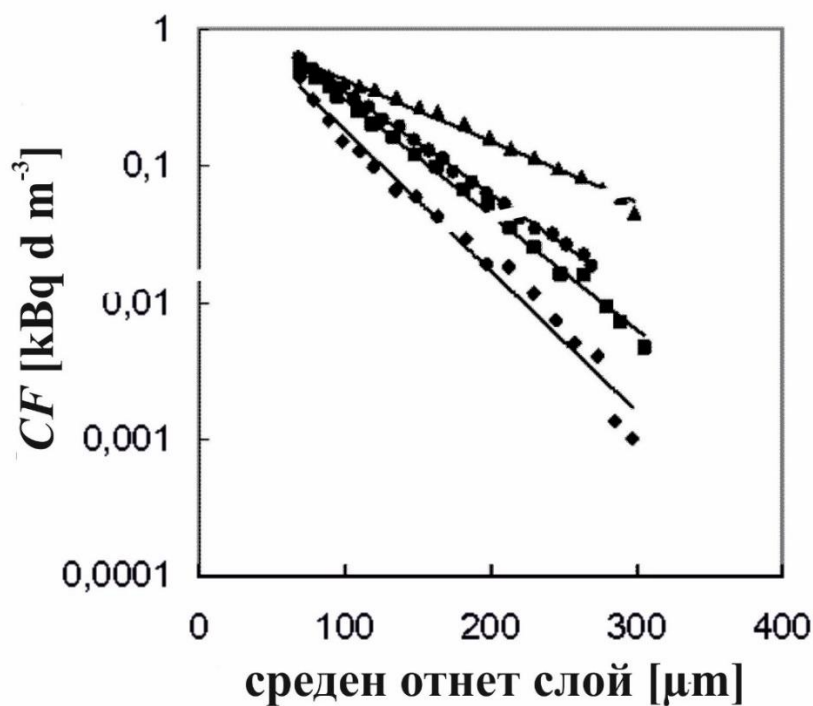
Калибровъчният коефициент зависи от температурата. При изследванията обикновено се използва среден калибровъчен коефициент ако нямаме информация за температурата. Методът обаче позволява също a posteriori температурна корекция [79].

III.6 A posteriori температурна корекция

Идеята за температурна корекция [79] е породена от това, че плътността на трековете зависи от дълбочината 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 [79]. При тях групи детектори са облъчени при 4 различни температури: 5°C; 19,5°C; 23,5°C и 38°C. Калибровъчният коефициент (CF), който е дефиниран в (III.1.3) зависи и от температурата. Тази зависимост ще е следствие от температурната зависимост на плътността на трековете на определена дълбочина $n_{net}(T,d)$ [79].

$$CF(T,d) = \frac{(n_{net}(T,d))}{I_V}. \quad (15)$$

На фигура III.10 е показана зависимостта на CF от дълбочината d , както е получена в [79]. В полулогаритмичен мащаб тази зависимост е права линия, което показва, че зависимостта на плътността на трековете от дълбочината d е експоненциална, в съгласие с теорията. Следователно и CF също има такава зависимост.

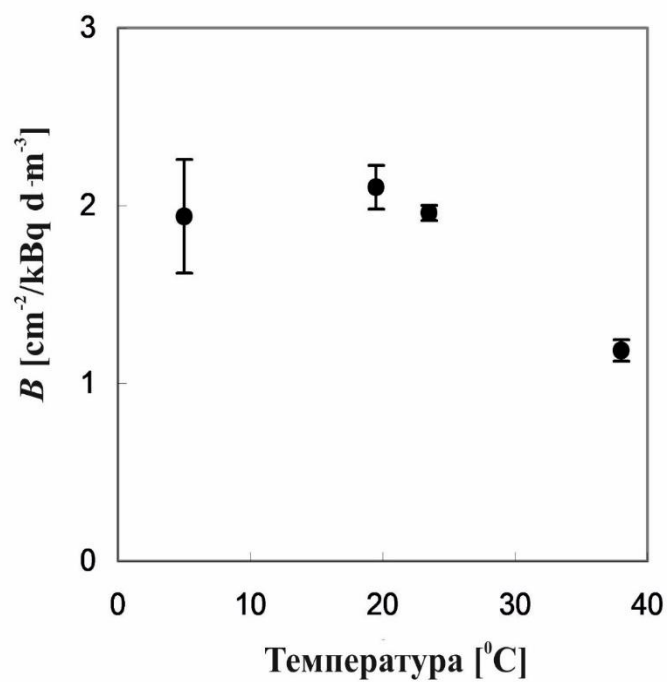


Фигура III.10. Зависимост на калибровъчния коефициент от дълбочината на проникването им под повърхността на CD/DVD Тази зависимост е показана за 4 температури: 5° C (■), 19,5° C (◆), 23,5° C (●) and 38° C (▲) и е по [79].

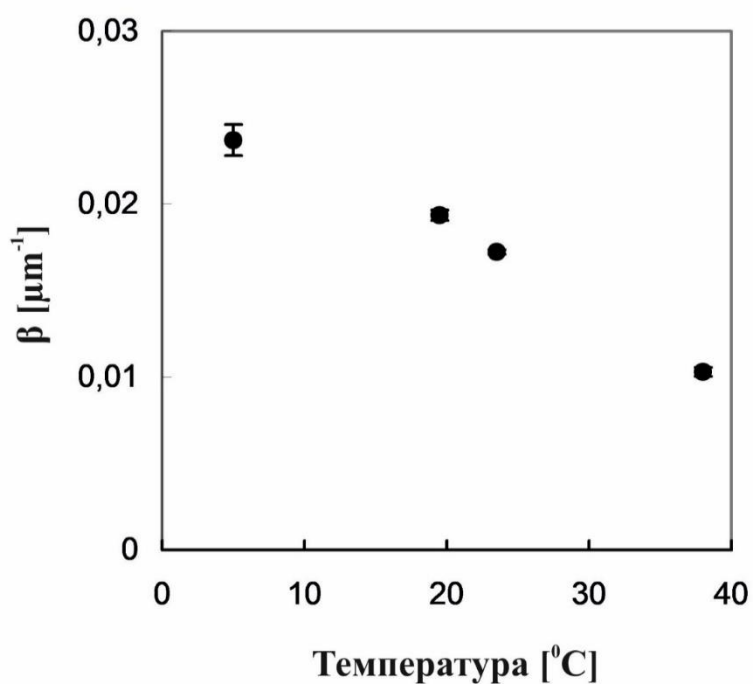
$$CF(T, d) = B(T) \exp[-\beta(T)d] = B(T) \exp\left[-\frac{d}{L_D(T)}\right], \quad (16)$$

където $B(T)$ и $\beta(T)$ са функции на температурата T а d е дебелината под повърхността на диска (μm).

a)



б)



Фигура III.11. (а) Температурна зависимост на параметъра B , (б) температурна зависимост на параметъра β съгласно [79].

Тук $\frac{1}{\beta(T)}$ има физически смисъл на $L_D(T)$ дължина на дифузия на атома на радона в поликарбонатния материал.

Параметърът β може да се изрази чрез измеряеми величини:

$$\beta = \frac{\ln\left(\frac{n_1}{n_2}\right)}{d_2 - d_1}. \quad (17)$$

където n_1 и n_2 са съответно повърхностните плътности на трековете на дълбочини d_1 и d_2 под повърхността на изследвания диск.

Следователно, за да се определи температурната зависимост на CF , е необходимо да се определи плътността на трековете на две различни дълбочини.

Неопределеността на β зависи от неопределеностите на $n_{1,2}$ и $d_{1,2}$ и се определя чрез израза:

$$\frac{\sigma_\beta^2}{\beta^2} = \frac{\frac{\sigma_{n_1}^2}{n_1} + \frac{\sigma_{n_2}^2}{n_2}}{\ln\left(\frac{n_1}{n_2}\right)} + \frac{2\sigma_d^2}{(d_2 - d_1)^2}. \quad (18)$$

При $d_1 = 80\mu m$ и $d_2 = 180\mu m$, статистическа неопределеност на трековете 10% и неопределеност на дълбочините $\pm 3\mu m$, за неопределеността на β се получава [79]:

Таблица III.2. Относителна неопределеност на β в зависимост от $T[^\circ C]$

$T[^\circ C]$	5	19.5	38
Относителна неопределеност %	7,3	8,4	14,4

От получената и показана на фигура III.11 зависимост за β от T , за неопределеността на T в конкретния случай се получава (таблица III.3) [79].

Таблица III.3. Неопределеност на “*a posteriori*” определената температура

$T[^{\circ}\text{C}]$	5	19.5	38
Неопределеност [$^{\circ}\text{C}$]	5,1	4,4	2,6

Прилагането на температурна корекция и индивидуално (апостериорно) калибриране позволява провеждането на измервания, потенциално с неопределеност дори по - добра от 10%. За тази цел е необходимо да бъдат обработени две полета на един диск на различна дълбочина и да бъдат намерени повърхностните плътности на трековете при тези дълбочини. Без температурна корекция неопределеността на обемната активност на радон обикновено е в рамките на 20%. Дори и в този случай неопределеността е значително по-малка от тази при останалите ретроспективни методи.

III.7. Принцип на CD/DVD метода за измерване на торон ^{220}Rn

При кумулативните измервания на радон неизвестен до сега оставаше приносът на торон при формиране на общото облъчване на човека. Това провокира насочване на вниманието на научната общност към този проблем. Доскоро липсваха методи за кумулативни измервания на торон.

През 2011 г. проф. Пресиянов предложи метод за комбинирани диференциални измервания на радон ^{222}Rn и торон ^{220}Rn , като се използва развитие на компакт - дисковия метод. Това се постига чрез ецване и изброяване на α - трековете на две различни дълбочини под повърхността на CD/DVD диска и анализиране на получения сигнал [36]. В приложение 2 е показана схемата на разпад на торон.

В таблица III.4 са показани началните енергии на α - частиците на радон и торон и техните дъщерни продукти, техният пробег и интервалът дълбочини, на които те могат да оставят следи в CD/DVD, ако се намират на повърхността на диска.

Поради малкото си време на полуразпад (55,6s), ^{220}Rn може да проникне в диска на дълбочина не надхвърляща 1 μm . Както се вижда от таблица III.4 единствено α - частиците на ^{212}Po могат да достигнат до дълбочина 76 μm , при това само тези, които имат траектория перпендикулярна на повърхността на диска. Основната идея на проф. Пресиянов е, че в CD/DVD диска има дълбочина $>76\mu\text{m}$, след която сигналът е създаден само от дифундиращия в обема радон ^{222}Rn и неговите ДПР (R сигнал). В дълбочината 64 -76 μm , към сигнала има принос и източник свързан с ^{220}Rn торон

Таблица III.4. За началните енергии на α – частиците, излъчени от радон и торон и съответните им дъщерни продукти, както и максималните им пробези в поликарбоната (в посока перпендикулярно на повърхността) и интервала от разстоянието, в които те формират трек [87].

Нуклид	^{222}Rn	^{218}Po	^{214}Po	^{220}Rn	^{216}P	^{212}Bi	^{212}Bi	^{212}Po
Начална енергия [MeV]	5,49	6,00	7,69	6,29	6,78	6,1	6,1	8,79
Пробег в Поликарбонат [μm]	37,0	42,5	63,2	45,8	51,6	43,1	43,5	78,6
Диапазон на формиране на трекове [μm]	18,9-35,2	22,4-40,7	35,7-61,4	24,6-44,0	28,3-49,8	22,8-41,3	23,1-41,7	45.6-76,8

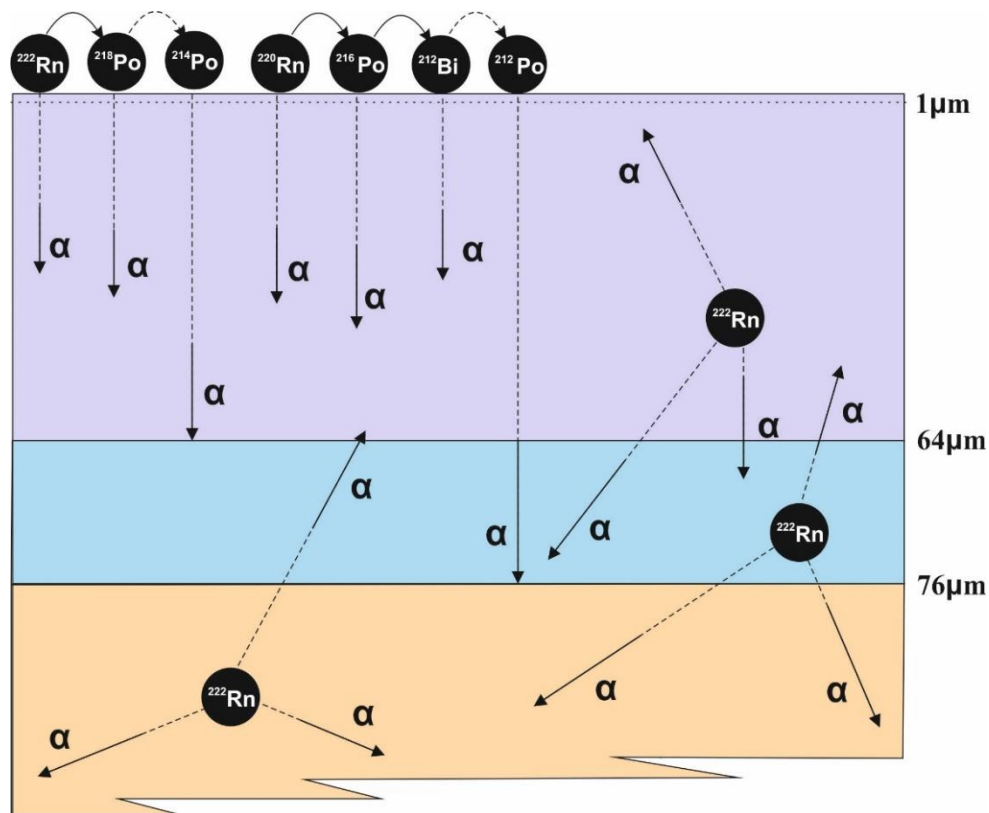
Забележка:

Следи при условията на ецване се формират само в края на траекторията на α - частицата, когато енергията на α – частицата е в интервала 0,3-1,7 MeV и ъгълът на падане спрямо ецваната повърхност е по - малък от 50 градуса [69].

(Т сигнал), а именно ^{212}Po (разпаден продукт на ^{220}Rn). Появата му се дължи на отложените по повърхността ДПТ и тези свързани с абсорбирания в тънък повърхностен слой торон.

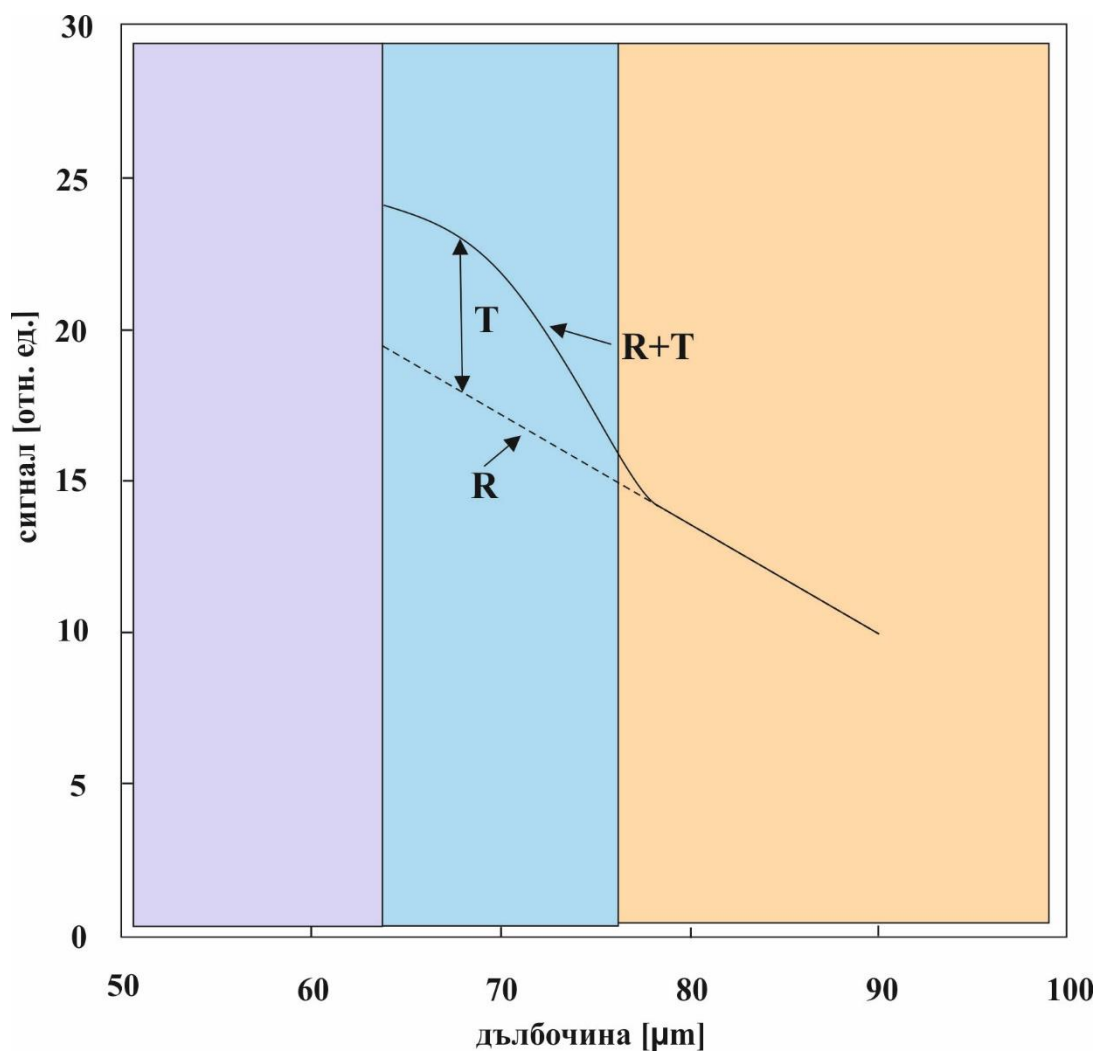
Дискът се обработва на две дълбочини. Сигналът на дълбочина $>76\mu\text{m}$ се дължи само на радон ^{222}Rn (R сигнал). Втората дълбочина на обработка трябва да е в интервала $64 - 76\mu\text{m}$ (R + T сигнал). След като бъде определен R сигнала, с помощта на разработения теоретичен модел [77,36] на разпределението на чистия радонов сигнал в дълбочина на поликарбонатната среда може да се определи радоновата компонента (R сигнал) в участъка, където сигналът е комбиниран.

На фигура III.12. и фигура III.13 е показана концепцията за R сигнала и за R + T сигнала, разположени в дълбочина на диска.



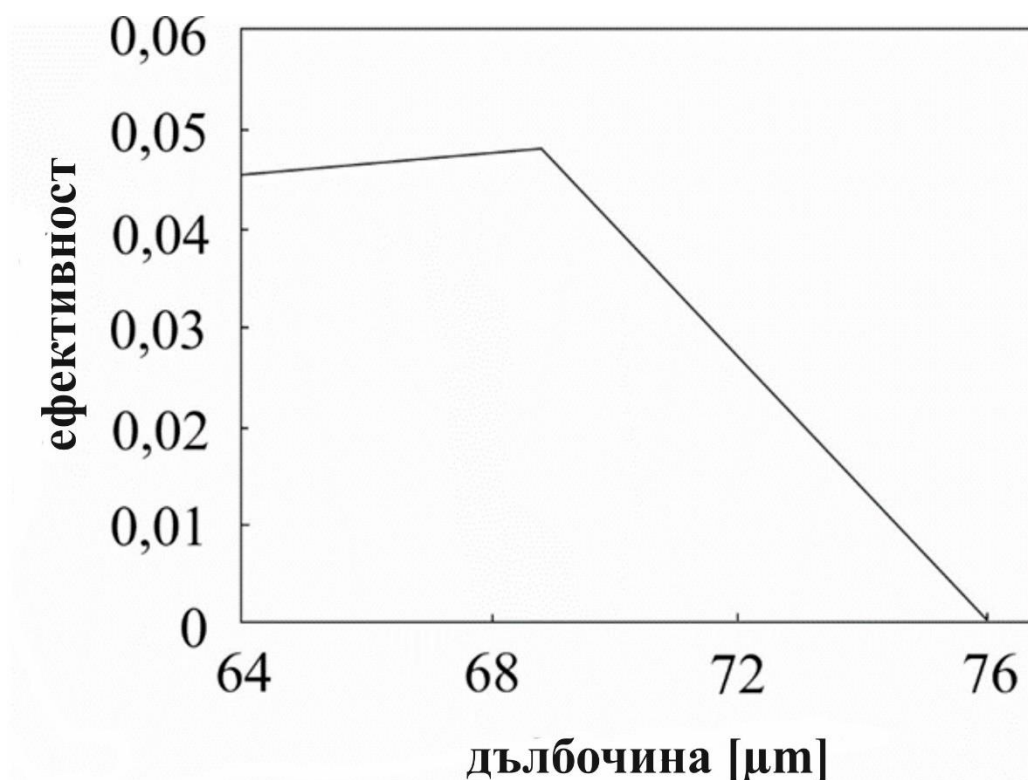
Фигура III.12. Максималните дълбочини в които могат да бъдат формирани α - частици на ^{222}Rn , ^{220}Rn и ДПР, намиращи се във въздуха близо до повърхността на диска или върху самата нея. Следите между $64\mu\text{m}$ и $76\mu\text{m}$ се дължат на ^{212}Po намиращ се на повърхността на диска и на абсорбираните атоми на ^{222}Rn в обема на диска и на продуктите на неговото разпадане [36,87].

След неговото изваждане от комбинирания сигнал ($R + T$ сигнал) остава чист торонов сигнал (T сигнал), който се използва за измерване на ^{220}Rn [87]. Това е илюстрирано на фигура III.13.



Фигура III.13. Разпределение в дълбочина на сигнала в CD/DVD диск. R сигналът е свързан с абсорбирания ^{222}Rn , а T сигналът е свързан с ^{220}Rn . Дълбочината до $64 \mu\text{m}$ не се използва за измерване. В интервала $64 - 76 \mu\text{m}$ сигналът е комбиниран ($R + T$), а сигналът при дълбочина $>76 \mu\text{m}$ е R и се дължи само на абсорбирания ^{222}Rn и неговите ДПР в диска [68].

Съотношението на нетната плътност на трековете за единица площ към брой разпади на ^{212}Po формира ефективността на регистрация на следите. Енергията на α – частица на ^{212}Po е 8,78 MeV. Тя достига дълбочина от 76 μm , но за да остави следа, която след това при ецването да стане видима и да бъде отчетена, енергията на частицата и ъгълът на падане трябва да бъдат в „енергийно ъгловия прозорец“ (0,3-1,7 MeV , $\theta < 50^\circ$) [69]. Ако приемем, че сигналът на ^{212}Po идва от поръхността на диска, след моделиране на зависимостта пробег - енергия на α - частици в Makrofol получаваме зависимост, която е показана на фигура III.14. От нея става ясно, че ефективността слабо се мени между 64 - 69 μm след което бързо намалява до 0 при 76 μm .



Фигура III.14. Ефективност на формиране на следи от α - частиците на ^{212}Po (8,78MeV) на различни дълбочини в CD/DVD [87].

При радоновото измерване нетната плътност на радоновия сигнал се привежда на 80 μm n_{R80} . За да бъде изваден от общия R+T сигнал той трябва да бъде

приведен на дълбочина 69 μm . Нека ρ е отношението на n_{R69} сигнала на 69 μm към n_{R80} . Числената му стойност се определя чрез използване на модел, описващ дълбочинното разпределение на радоновия сигнал. За температурния интервал 10⁰-30⁰C стойностите варират от 1,27 до 1,14, за средната стойност е прието $\rho = 1,21$ [36].

За чистия торонов сигнал n_T на дълбочина 69 μm се получава следната зависимост:

$$n_{R+T} - \rho n_R = n_T, \quad (19)$$

където n_{R+T} е нетната плътност на трековете на дълбочина 69 μm .

Ако при химичното преецване е отнета дебелина по-голяма от 69 μm , но не по – голяма от 76 μm , се използва коригиран CF_T , който се изчислява по формулата:

$$CF_T = CF_{T0} \left[\frac{(76 - d)}{7} \right]. \quad (20)$$

Тази формула се въвежда, за да отчете линейното намаляване на ефективността на регистрация на трекове в диапазона 69 μm -76 μm . Те намаляват до нула при $d \geq 76\mu\text{m}$ (фигура III.14).

За интегрираната торонова концентрация се получава:

$$I_T = n_T / CF_T. \quad (21)$$

Трябва да се отбележи, че при този подход нямаме „чист“ торонов сигнал. За да бъде определено нивото на ²²⁰Rn е необходимо първоначално да бъде определено нивото на ²²²Rn [87].

Една от задачите на тази дисертация е развитието на този метод за кумулативни измервания и очертаване на границите на приложимостта му в условията на подземни обеми – рудници и пещери. Тъй като измерването на радон и торон е комбинирано, важна цел е и очертаване на прозореца, в рамките на който може да бъде регистрира торон.

При време за експониране на диска T , средната обемна активност на торон C_{ATn} ще е:

$$C_{ATn} = \frac{I_T}{T} = \frac{n_T}{T \cdot CF}. \quad (22)$$

Съответно относителната неопределеност $\delta(C_{ATn})$ ще е:

$$\frac{\sigma(C_{ATn})}{C_{ATn}} = \sqrt{\left(\frac{\sigma(T)}{T}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(n_T)}{n_T}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(CF)}{CF}\right)^2}, \quad (23)$$

където T и $\sigma(T)$ са съответно времето за експозиция и неговата неопределеност, n_T и $\sigma(n_T)$ са съответно нетната плътност на тороновия сигнал и неговата неопределеност, а $\sigma(CF)$ е неопределеността на калибровъчния коефициент.

Тъй като формирането и измерването на тороновият сигнал има статистически характер, т.е. получена положителна плътност на трековете при определяне на тороновия сигнал, може да се дължи на тази статистическа флуктуация. Ето защо е необходимо да се определи критично ниво на детектиране, което да ни даде увереност (над 95%), че не допускаме грешка от първи род (да твърдим, че има торонова активност, а в действителност да няма такава) [89]. В случая, това критично ниво зависи и от радоновия сигнал [36].

III.8. Калибриране по торон

Тук ще разгледаме калибрирането на „открити“ (голи, намиращи се извън кутийките си) дискове, тъй като само такива бяха използвани за изследвания в дисертацията.

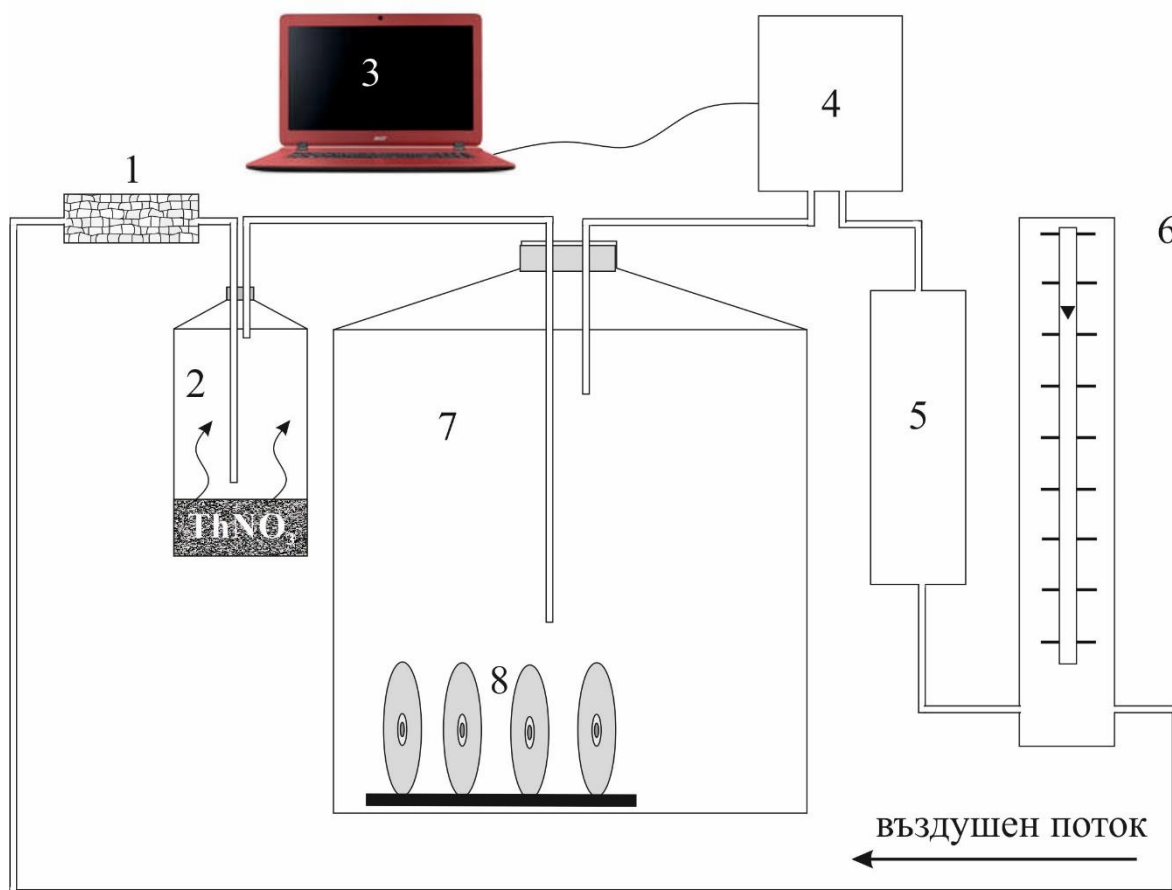
Калибрирането по торон е описано в [90]. При неговото провеждане са използвани дискове Verbatim DVD-та. Тяхната чувствителност към радон се оказва близка до средната чувствителност на другите марки дискове. Няколко нови диска бяха подложени на облъчване с торон, като на разстояние <10 cm от тяхната повърхност нямаше други обекти (фигура III.15). Това е важно, тъй като процесите на

повърхностно депозиране на ДПТ, които са основни при формиране на тороновия сигнал в CD/DVD диска се влияят от обекти, намиращи се в непосредствена близост до тях. Други дискове бяха оставен необлъчени, за да бъде измерен фоновия сигнал в тях. Проведени са две експозиции, като първата от тях е за дискове в различни кутии. При втората експозиция са използвани голи дискове, като до едни от тях в близост са поставени два цилиндрични обекти (на около 2 cm от голата им повърхност). Екранирането на дисковете се прилага, за да се види дали и до колко външни обекти влияят на тороновия сигнал в близост до повърхността им. Полученият калибровъчен коефициент в тези случаи е даден в Таблица III.5 [68].

Таблица III.5. Средна стойност на CF за експозиция на DVD дискове (голи (открити), голи (екранирани) [87,90].

Експозиция на дискове	CF [$\text{cm}^{-2}/\text{MBq h m}^{-3}$]
голи (открити)	144 ± 17
голи (екранирани)	63 ± 8

Торонът се получава от стар ториев нитрат. Въздушният поток пренася освободения торон от източника в камерата за облъчване и в сцинтилационна камера Лукас [90]. Камерата на Лукас е цилиндричен съд от вътрешната страна на който стените са покрити със сцинтилатор за α – частици: ZnS(Ag). Посредством камерата на Лукас се правят измервания на обемните активности на торон [90].



Фигура III.15. Установка за облъчване с торон. 1. Изсушител. 2. Източник на ^{220}Rn (PYLON Electronics inc Canada), 3. Компютър, 4. Камера на Лукас, 5. Помпа, 6. Ротаметър, 7. Херметично затворена камера, 8. CD/DVD-детектор,

При голите дискове чувствителността е много по - висока отколкото при дискове в кутии [90]. Налице е доказателство, че присъствието на външни обекти влияе на техния сигнал. Тези резултати ни показаха направлението в което да работим за използването на дискове при измерване на торонов сигнал, а именно: голи не екранирани дискове, с чувствителна за торона повърхност насочена към свободно въздушно пространство, в което на разстояние поне 10 cm няма други повърхности.

На по – късен етап беше извършено калибриране на голи не екранирани CD та Verbatim в международна референтна калибровъчна лаборатория. Облъчването и измерването на коефициента на калибриране CF за торон от двете страни на диска бяха извършени в IRSN, Saclay, France. Полученият среден калибровъчен коефициент

в този случай беше $CF = 122 \pm 23\% [cm^{-2}/MBq\ h\ m^{-3}]$ за лицевата страна, което не се различава съществено от $CF = 144 \pm 12\% [cm^{-2}/MBq\ h\ m^{-3}]$ получено в [90] и разликата не е статистически значима. Налага се да отбележим, че на този етап не виждаме перспектива за по - прецизни измервания (например с относителна неопределеност по – малка от 10%) на торон посредством CD/DVD.

ГЛАВА IV

Измервания в реални условия

IV.1. Пилотни кумулативни изследвания в подземни обекти на радон ^{222}Rn и торон ^{220}Rn

Предизвикателствата, пред които се изправят методите и детекторите в подземна среда са:

- влажност (близка до 100%) водеща до образуване на конденз върху детекторите;
- висока запрашеност;
- взривни газове (обикновено азотни оксиди), които заедно с влагата образуват киселинна субстанция;
- взривни вълни, включително с разрушителна сила;
- любопитен или недобронамерен персонал, причиняващ загуба (повреда) на детектори.
- За да бъде съставена подробна карта на радоновите нива във въздуха на минните галерии и диагностика на ефективността на вентилацията точките, в които трябва да се проведат едновременни измервания са многобройни и разпределени по целия рудник.

Работата със CD/DVD като детектори на радон демонстрира тяхната възможност да дават надеждни резултати при екстремални външни условия (100% влажност, прах, дим и др.). Това показва, че те имат потенциал да бъдат използвани за кумулативни измервания в подземни условия (мини и пещери).

Изследването на този потенциал е основна задача на дисертацията, която е пряко свързана с актуални предизвикателства в минно – добивния отрасъл.

За целта е необходимо да се отговори на следните въпроси:

1. Ще останат ли CD/DVD дисковете непокътнати след месеци излагане в реална работеща мина?
2. Възможен ли е цялостен радонов и торонов мониторинг на реална мина чрез използване на CD/DVD дискове?
3. Възможно ли е измерване на торон при различни (включително високи) нива на радон?

Поликарбонатният материал, от който са изработени дисковете е достатъчно здрав да издържи на взривните вълни, а дори и да претърпи механични счупвания, информацията в него може да бъде прочетена и анализирана успешно. Лабораторните експерименти са показали, че радоновият сигнал под 76 μm не се влияе от влага, прах и дим [82]. Стойността на един детектор е ниска. Това е стойността на един CD/DVD диск.

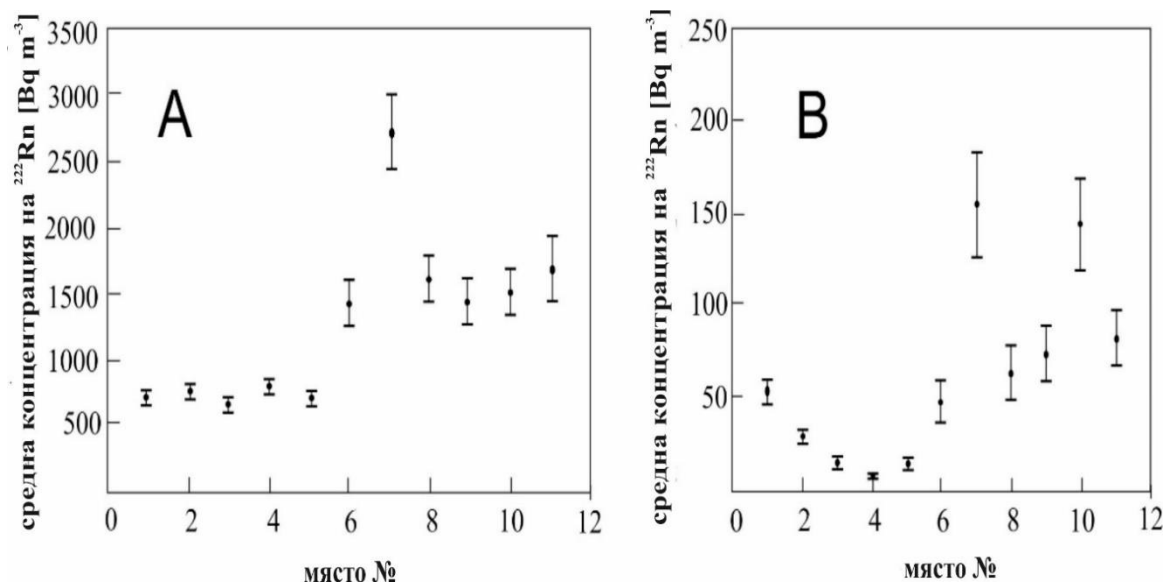
Единственият фактор, който оказва влияние върху показанията на CD/DVD метода е температурата. Тази зависимост при подземните обекти може лесно да бъде отчетена. Факт е, че дори да се променя от едно работно място на друго, температурата на едно работно място е относително постоянна.

IV.1.1. Пилотни измервания на радон и торон в мини

През 2013 г. бяха направени първи опити за комбинирани пасивни измервания на радон и торон в мините чрез използване на CD/DVD метода. Трябва да отбележим, че сведенията за торон в подземни мини са оскъдни или липсващи. Основна причина за това са липсата на подходящи детектори за торон в такава среда. Тъй като чрез CD/DVD метода могат да се правят комбинирани измервания на радон и торон и свойствата му са подходящи за тези условия, бяха направени пилотни измервания за да се установи приложимостта му в минните условия. Бяха разположени дискове в полиметална мина в България, като местата бяха разделени на такива с действаща вентилация и такива, които бяха изолирани и нямаша вентилация.

Разстоянията между отделните точки на измерване бяха десетки метри. Дисковете бяха оставени за период от 7,5 месеца, след което бяха събрани и обработени по описания вече начин. Сигналят на двете дълбочини беше определен и беше използван за изчисляване на средната концентрация на радон и торон. При изчисляване на средната концентрация на ^{222}Rn беше използван среден калибровъчен коефициент за 17°C , каквато е средната температура за тази минна галерия. При изчисляване на средната концентрация на ^{220}Rn е използван калибровъчният фактор за открити дискове, получен след а priori облъчване на нови голи дискове от същата марка Verbatim DVD. Полученият в този случай калибровъчен фактор за ^{220}Rn е $CF = 144 \pm 17 [\text{cm}^{-2}/\text{MBq h m}^{-3}]$. Комбинираната неопределеност се пресмята съгласно стандартните процедури за обработка на данни и пренос на неопределености [89].

Резултатите показаха съществена разлика в радоновите и тороновите нива във вентилираната и невентилираната част на минните галерии фигура IV.1.



Фигура IV.1. Резултати от комбинирани кумулационни измервания на ^{222}Rn (А) и ^{220}Rn (В). Точки 1 - 5 са с вентилация, а 6 - 11 без такава.

Дисковете с номера от 1 до 5 са от работни места с работеща вентилация. Дисковете с номера 6 до 11 са от места, които нямат вентилация (глухи галерии) [91].

Докато сигналът за радоновите нива във вентилираната част беше статистически неразличим за различните места, този в невентилираната част показва разлики, въпреки, че разстоянието между тези точки е няколко десетки метри. Поведението на радоновите нива беше малко по - различно. Дори и във вентилираната част на галерията това ниво се променя. Общата тенденцията е покачване на нивата на радон и торон в невентилираната част от галерията. Това ясно демонстрира ефекта, който има вентилацията на рудника върху нивото на радон и торон. В този случай ^{220}Rn концентрацията не е висока, но концентрацията на ^{222}Rn е висока и надхвърля референтното ниво за работни места [10,91].

IV.1.2. Пилотни измервания на радон и торон в пещери

Пещерният свят е изключително разнообразен и интересен. Той се е превърнал в желана туристическа дестинация и кръгът от хора, желаещи да се запознаят с неговата красота от близо, все повече се увеличава. Не малко хора са превърнали подземните експедиции в своя професия. Но какви са съдържанията на радон във въздух? Отговор на този въпрос могат да дадат непосредствените измервания на нивата на радон и торон там.

През зимния период на 2013-2014 година бяха заложени 4 броя дискове Verbatim CD в пещера „Змеевица“, Софийска област. Те престояха там 7 месеца. Дисковете бяха закрепени във въздуха с помощта на дървени пръчки, далече от стените. Разстоянията спрямо входа бяха съответно около 70 m, 100 m и 200 m. Един диск от тях беше запазен за да бъде измерен фона им. През целия този период той беше съхраняван на открито и сухо място, без пряка слънчева светлина.

Резултатите от измерването са показани на таблица IV.1.

Таблица IV.1 Резултати от измервания на ^{222}Rn и ^{220}Rn в пещера „Змеевица“, Софийска област

Разстояние от входа [m]	$C_A[Bq\ m^{-3}]$ ^{222}Rn	$C_A[Bq\ m^{-3}]$ ^{220}Rn
70m	973±204	118±25
100m	1556±318	140±30
200m	1757±357	92±38

Докато в минните галерии има задължителна вентилация, в пещерите по правило съществува само естествена вентилация, която зависи от много условия и в общия случай е недостатъчна за снижаване на радоновото ниво. От таблицата в която са представени резултатите от измерването, ясно се вижда увеличението на концентрацията на радон във въздуха с увеличаване на разстоянието от входа на пещерата. Радоновото ниво бързо нараства и надхвърля референтното ($300\ \text{Bq}\ \text{m}^{-3}$, съгласно [10]. Тороновият сигнал в този случай е сравнително нисък.

IV.2. Сравнение между CD/DVD и дифузионни камери в реални условия

За сравнение в действащи рудници в Челопеч, Златоград и Лъки бяха направени паралелни измервания с дифузионни камери, които са широко използвани в радиационния мониторинг на сгради и работни места.

Ние подготвихме дифузионни камери с метален корпус, който се отличава с по-голяма здравина в сравнение с пластмасовите. Това е съществено предимство, когато се имат в предвид взривните вълни в минната галерия. Дифузионната камера представлява метална цилиндрична кутия с диаметър 75 mm и височина 80 mm, на чийто капак (от вътрешната страна) е закрепен детектор Kodak Pathe LR-115/II, обърнат с регистриращата си повърхност към вътрешността на камерата (фигура IV.2).

Както вече беше споменато погоре, влиянията на средата върху детекторите в условията на минната атмосфера са висока влажност, взривни газове (азотни окиси), кал и прах, шокови взривни вълни и др. Решихме измерванията да се извършват паралелно с два вида детектори (фигура IV.3).

1. Дифузионна камера с SSNTD детектор в нея - Kodak Pathe LR-115/II.
2. Новозакупени DVD дискове (с нисък фонов сигнал).



Фигура IV.2.

Метална дифузионна камера:

1 Вътрешен обем на камерата.

2. Метален капак.

3 Kodak Pathe LR-115/II



Фигура IV.3.

1. Дифузионна камера.
2. DVD.

Вътре в дифузионните камери беше поставен Kodak Pathe LR-115/II детектор с лице към вътрешния обем на камерата. Двата детектора, DVD и дифузионната камера бяха поставени близо един до друг и бяха позиционирани в различни точки на минните галерии в продължение на 4 месеца (фигура IV.4.).



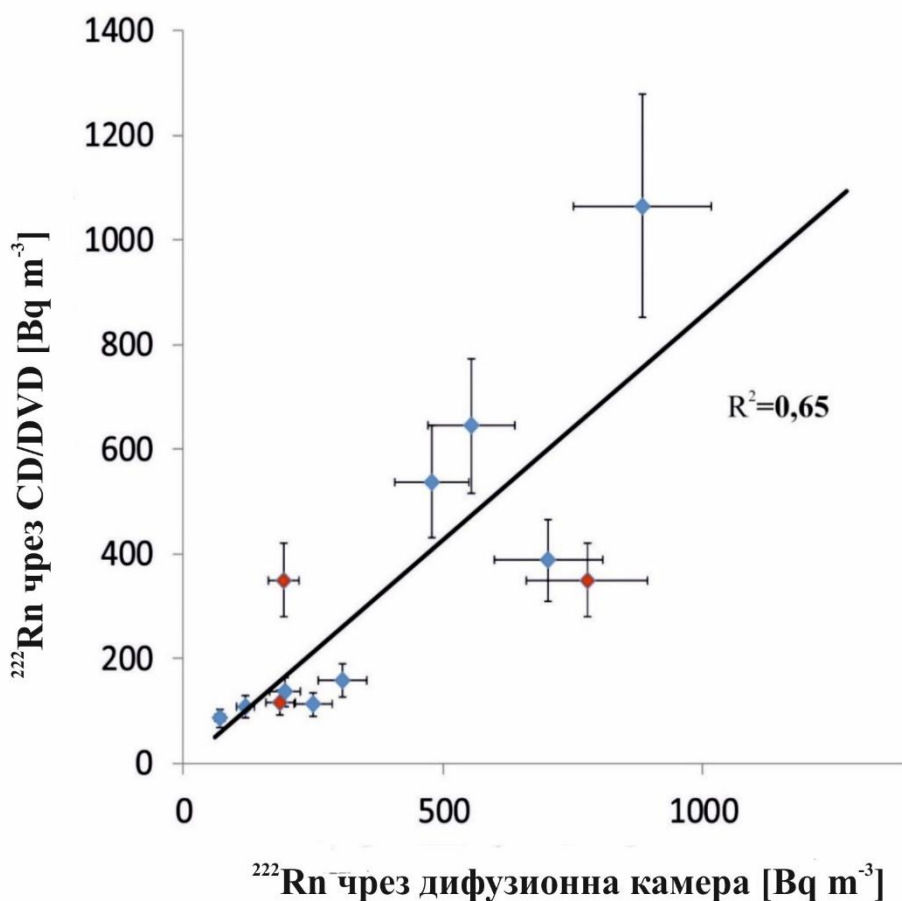
Фигура IV.4. Позициониране на дифузионна камера и CD/DVD диск в минна галерия.

Част от тези точки са така наречените „контролни точки“, в които постоянно се измерват скоростта, влажността и температурата на въздушния поток в минната галерия. Напречното сечението на галерията в тази точка също е известно така че може да се определи скоростта на пренос на въздушния поток. През този период няколко дифузни камери бяха повредени, като се нарушаваше целостта на камерата. Обикновено това е ставало от взривните вълни в минните галерии. Други камери се оказваха пълни с вода, която трудно може да се определи дали е кондензирана или е стекла се върху камерата (с разтворен ^{226}Ra в нея). Това проваляше измерването с дифузионна камера в тези точки и показва съществени проблеми при използването на този вид детектори в подземна среда. Камерите с вода и кондез в тях бяха изключени от сравнението. Нямаше безвъзвратни загуби на дискове. Имаше такива с нарушена

цялост, но те имаха достатъчно запазена повърхност, от която след обработка се извличаше информацията за облъчването им.

При CD/DVD декторите не се губят при счупване, дори и да са счупени, те запазват информацията в тях и могат да бъдат анализирани.

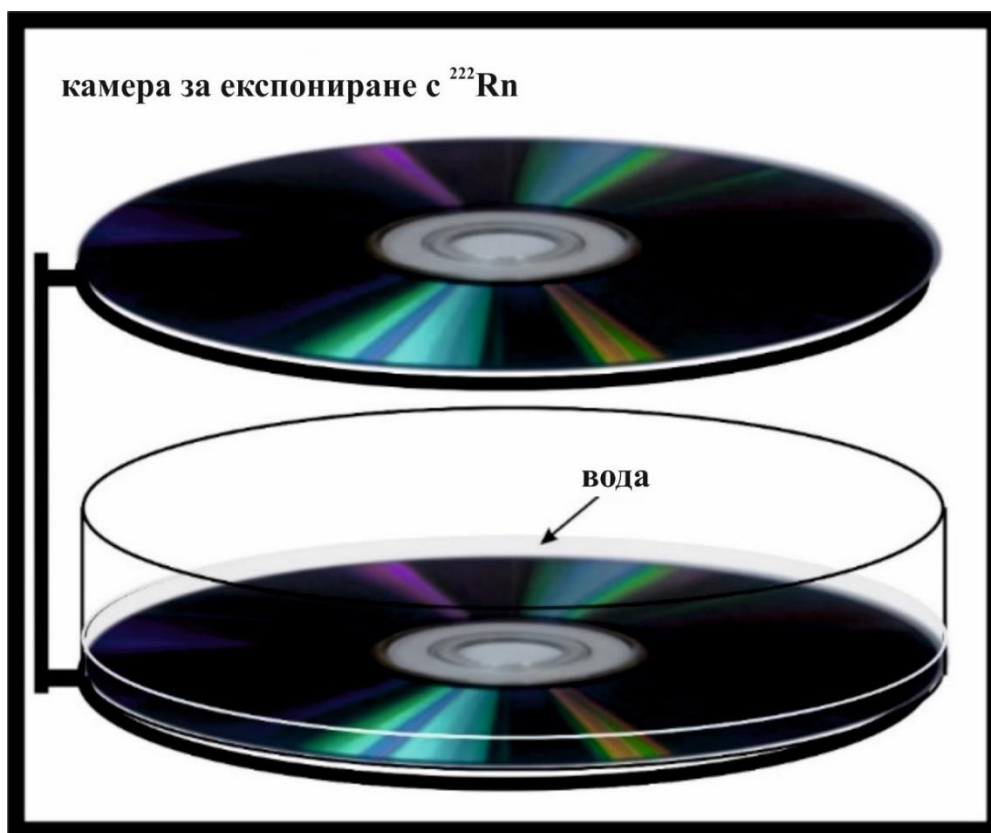
Както се вижда от фигура IV.5. налице е относително добра корелация между дифузионните камери и DVD. Опитът определено показва по-голяма надеждност и издръжливост на дисковете, по отношение на дифузионните камери.



Фигура IV.5. Корелация между средното ниво на ^{222}Rn измерено чрез дифузионна камера и DVD.

IV.3. Влияние на тънък воден слой върху повърхността на CD/DVD детектори [92]

Високата влажност (включително до 100%) е обичайно явление за минните галерии и пещерите. Поради това образуването на конденз върху детекторите е често срещано в някои точки на измерване. Освен това, особено в минни изработки е възможно намокряне на детекторите поради течащи или пръскащи води. В някои случаи е възможно цялата повърхност да е мокра - тънък воден филм или капки върху нея. За да се изследва влиянието върху резултатите на тънък воден слой по повърхността на диска, бяха подготвени два диска от един и същи тип, от една партида. Единият от тях беше поставен свободен, а другият беше поставен в съд на



Фигура IV.6. Проверка на абсорбиращите свойства на CD/DVD под тънък слой от вода.

Петри с дестилирана вода така, че лицето на диска да е нагоре и да се намира на около 2 mm под повърхността на водата. Слой 2 mm е много по – малък от дължината на дифузия на ^{222}Rn във вода (22 mm [93]) и същевременно значително по – голям от дебелината на водния филм които сме наблюдавали върху намокрени дискове в подземни условия.

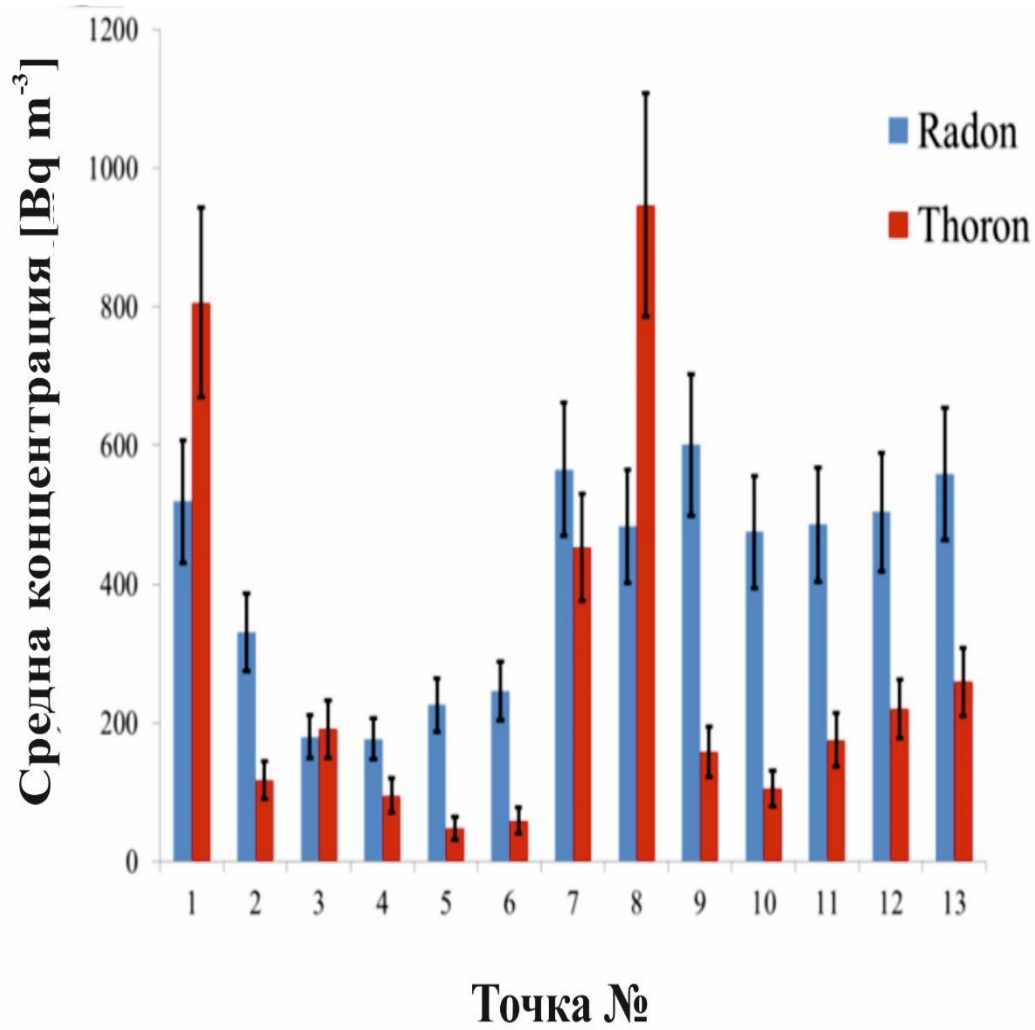
Двата диска бяха поставени в камера за експониране с радон на определена радонова концентрация (фигура IV.6). След облъчването им с ^{222}Rn , двата диска бяха ецвани за радон и бяха отчетени статистически неразличими сигнали. Сухият имаше плътност на трековете $403 \pm 8 [\text{cm}^{-2}]$, а потопеният във вода имаше $392 \pm 8 [\text{cm}^{-2}]$. Разликата в сигнала от двата диска е в рамките на експерименталната неопределеност и не е статистически значима. Този резултат може лесно да бъде обяснен. Дифузната дължина на радон във вода е около 22mm, което е много в сравнение с дебелината на водния слой над абсорбиращата повърхност на диска. Поради това разпределението на радон над тази повърхност може да се приеме за хомогенно. Радоновата концентрация във вода при стайна температура и нормално налягане е около 25% от тази във въздуха при същите външни условия. Разтворимостта на радон в поликарбонат от водна среда е 4 пъти по-голяма, отколкото от въздушна среда [94]. В резултат на това, концентрацията на радон в поликарбонат ще е същата каквато е и при експозиция във въздух. Този факт е забелязан и от други автори [95]. Всичко това добавя едно ново предимство при измерване на радон със CD/DVD детектори. Тяхното показание не зависи от наличието на тънък филм влага/вода върху повърхността на диска.

При измерването на торон обаче наличието на конденз променя повърхностните условия за формиране на торонов сигнал и прави измерването невалидно. Следователно чрез CD/DVD метода може да се измерва торон на места, където влажността не е достатъчна да се образува конденз.

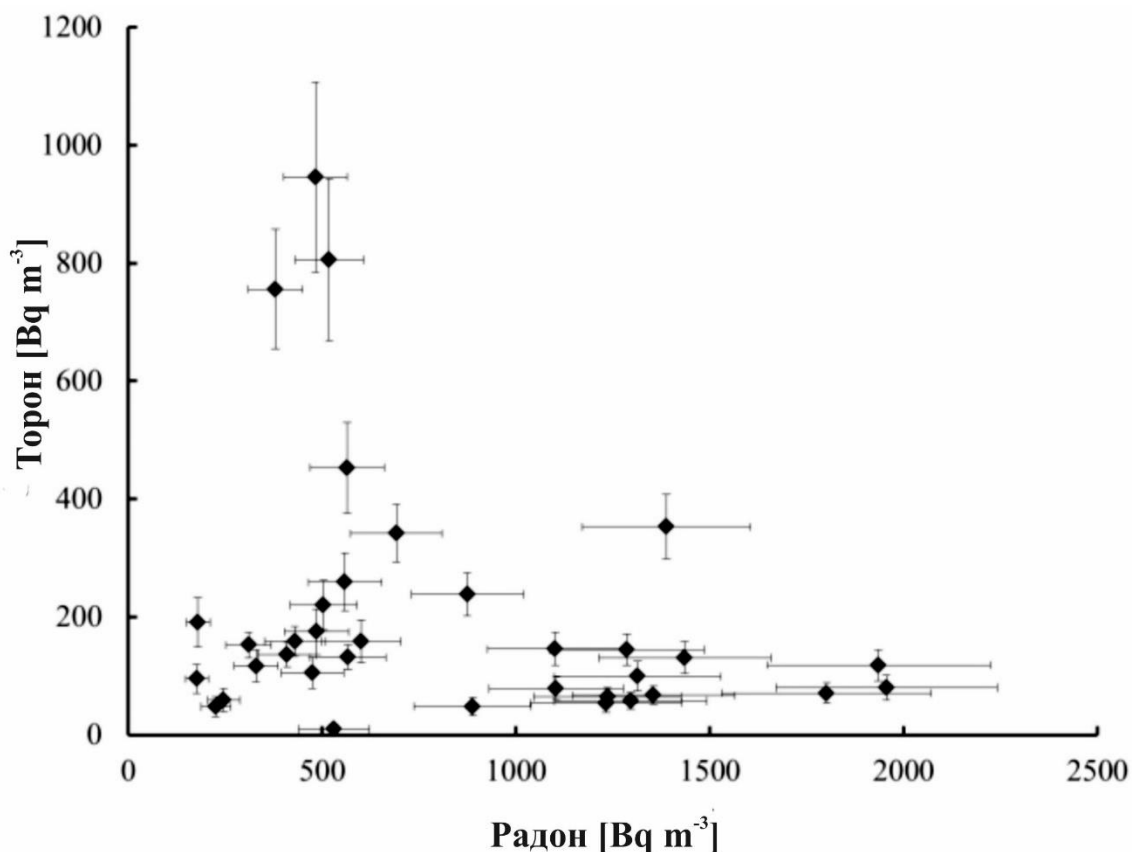
IV.4. Паралелни кумулативни измервания на радон и торон в мини посредством CD/DVD

В рамките на първото такова изследване 13 CD-та бяха поставени на различни работни места в полиметална мина в България, където престояха 4 месеца. Дисковете бяха закачени в горния край на галериите на разстояние, по-голямо от 10 cm от стените ѝ. Калибровъчният коефициент, използван за пресмятане на средната торонова активност, беше същият установен в [90]. При избраната от нас експозиция от 4 месеца в минни галерии, резултатите във всички изследвани точки бяха над минималното детектируемо ниво според критерия на Currie [88]. Минимално детектируемото ниво за ^{222}Rn при 4 месечена експозиция е около 100 Bq/m^3 , докато минималното ниво за ^{220}Rn зависи от сигнала, получен за ^{222}Rn [96]. Резултатите от измерването на средната радонова и торонова концентрация са показани на фигура IV.7.

За да се изясни дали има корелация между нивата на радон и торон бяха проведени паралелни измервания на ^{222}Rn и ^{220}Rn , в 35 точки на действаща полиметална мина. Единственото условие беше детекторите да са без конденз, за да е валидно тороновото измерване. Резултатите са показани на фигура IV.8.



Фигура IV.7. Средна концентрация на ^{222}Rn и ^{220}Rn концентрация [Bq m⁻³], измерена чрез CD-та, престояли 4 месеца на работни места в полиметална мина [96].



Фигура IV.8. Липса на корелация между измерените средни нива на ^{222}Rn и ^{220}Rn [92].

Липсата на корелация е очевидна. Това бе потвърдено и от статистически анализ. Оценки на нивата на радон и торон могат да се правят само въз основа на преки измервания на всеки от двата вида изотопа. Подобен извод, отнасящ се за сгради е направен от други автори [42].

В заключение можем да отбележим:

Измерването на концентрацията на радон и торон в условията на подземни рудници и пещери с използването на CD/DVD е възможно и предлага удобен метод за контрол на минната атмосфера на работното място. Този метод може да проследява разпространението на ^{222}Rn и ^{220}Rn в минните галерии и пещери и да идентифицира източник на замърсяването им.

Резултатите от сравняването на измервания (на ^{222}Rn) с дифузионни камери показва добро съвпадение.

Изводът е, че CD/DVD дискове могат да бъдат използвани успешно като пасивни детектори на радон и торон в условията на подземни минни галерии и пещери.

Както се вижда, във всички точки на измерването ^{222}Rn и ^{220}Rn присъстват в измерими количества, като в две от тези точки концентрацията на ^{220}Rn значително надхвърля концентрацията на ^{222}Rn . Липсва корелация между ^{222}Rn и ^{220}Rn . Това обосновава необходимостта при радиационен мониторинг на мините да се измерва и ^{220}Rn .

ГЛАВА V

Използване на CD/DVD метода за изследване на пространствени или времеви изменения на нивото на радон.

Идеята на метода за пръв път предложен в 2011г. [97] и разглеждан в тази глава, е да се използват два или повече диска, експонирани в различни времеви интервали или на различни места за да се диагностицират изменения в нивата на радон във времето или пространството. Този подход бе развит и изследван в две направления:

1. Изследване на влиянието на енергоспестяващи реконструкции, извършени в миналото върху нивото на радон
2. Идентифициране на източници на замърсяване с ^{222}Rn в подземни условия.

V.1. Влияние на реконструкцията на жилища върху нивата на радон в тях

Първото предприето от нас изследване бе с цел да се установи дали „енергоспестяващите мерки“ в жилища се отразяват на нивата на радон.

Различните характеристики на сградата влияят върху нивата на радон в тях. За възможното им влияние върху нивото на радон в сградата е известно отдавна [98], а влияние на енергоефективната реконструкция на сградата върху нивото на радон в нея се допуска преди много години [99]. Проблемът е в събирането на данни и доказването на тези твърдения. Тази задача може да се раздели на две подзадачи.

Измерване в сгради преди да бъде извършен съответния ремонт и измерване след извършване на този ремонт. Те изисква много време (години), подходящи обекти и методи за измерване.

Случаи на значително влияние на реконструкцията на жилища върху нивата на радон в тях са публикувани в [100,101]. Измерванията обаче са с голям интервал между тях и при различен обем на реконструкция. Установеният по този начин ефект много зависи от мястото, обема и вида на реконструкцията.

В последните години в България се появи и продължава да се развива политиката за подобряване на енергийната ефективност на съществуващите сгради, така нареченото саниране, а при изграждането на нови, тя е една от основните цели. Ето защо е важно системното проучване на въздействието, което оказва санирането върху нивото на радон в сградите. За тази цел могат да се използват ретроспективни измервания чрез CD/DVD в сгради, претърпели такъв ремонт. Измерванията трябва да позволяват оценка на нивото на радон преди ремонта и след ремонта. Както бе подчертано по горе, при проспективните измервания такава задача би изисквала продължително време за измерване, подходящи обекти и наличие на подходяща апаратура, която да бъде ангажирана с измерванията за дълъг период от време. Поради това извършване на такива проучвания, в нашата страна, досега не беше възможно.

Почти във всеки дом има CD/DVD дискове, съхранявани там с години. Тези дискове могат да служат за детектори на радон, които са събирали информация за нивото на радон в жилището през цялото време на съхраняването им там. Сигналят от диска се дължи на интегралната обемна активност на радона през периода на неговото формиране. След анализа на диска, се определя средното ниво на радон за този период. Нека имаме два диска (приемаме за да илюстрираме идеята, че са с еднакви CF) от едно и също жилище, единият от преди 10 години и другият от преди 5 години. На диска от преди 5 години плътността на трековете ще се дължи на средното ниво на радон от този 5 годишен период. На диска от преди 10 години ще имаме същата плътност на трекове причинени от същия период, плюс трекове причинени от периода от 10^{та} година до 5^{та} година.

След като знаем тази плътност от първия диск, можем да я извадим от общата плътност на трековете от втория диск и ще получим плътността на трекове получени в периода от 10^{тата} година до 5^{тата} година. Нещо повече, след като знаем плътността на

трековете, получени през двата периода и времето на съхраняване на дисковете в жилището, може да се определи радоновото ниво през тези периоди. Ако например радоновото ниво се е променило преди 5 години, ние ще отчетем тази промяна при анализа на първия диск и при сравняването му с резултата от периода от 10^{тата} година до 5^{тата} година при анализа на втория диск.

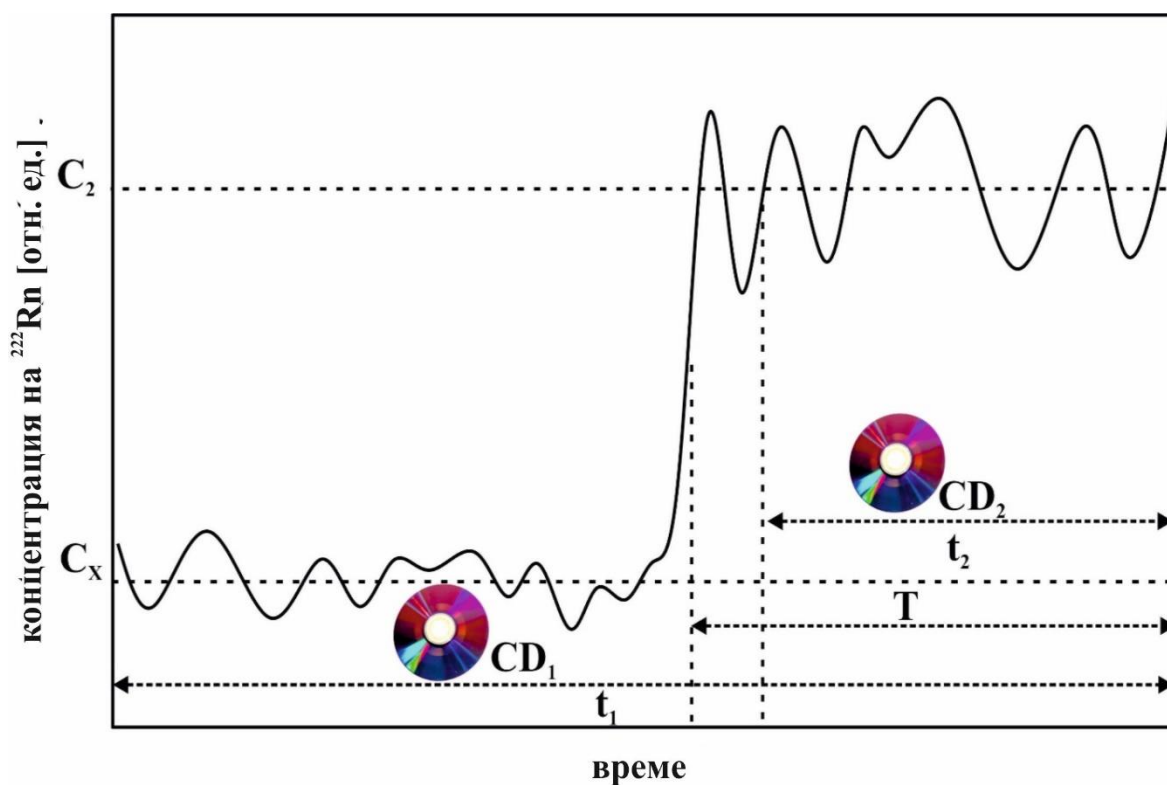
V.1.1 Методология

За да измерим промяната на концентрацията на радон в жилища, след реконструкция на жилището, включваща и смяна на дограмата, която е настъпила преди време $T[y]$ се използват по два диска, престояли само в това жилище. Първият трябва да е от момент $t_1[y]$ където $t_1 > T$ (дискът да е от преди ремонта на жилището). Вторият диск трябва да е престоял в жилището $t_2[y]$ където $t_2 \leq T$ Най добре е $t_2 = T$ (появата на втория диск в жилището да съвпада с момента на ремонта му). Тази концепция е илюстрирана на фигура V.1. След обработка на двата диска се определя повърхностната плътност на трековете върху тях съответно n_1 за първия диск и n_2 за втория диск.

Върху втория диск е отложен радонов сигнал след формиране на новото му ниво. В рамките на t_2 средното ниво на радон може да бъде намерено използвайки стандартната процедура за определяне на радоновото ниво. То е:

$$C_2 = \frac{n_2}{CF \cdot t_2}, \quad (1)$$

където n_2 е „чистата плътност на следите” от този диск.



Фигура V.1. Концепция на метода. Сградата е била реконструирана в минал момент **T**. По старият от двата диска се намира в сградата от момента $t_1 > T$, а по - новият се намира там от момента $t_2 \leq T$.

Неопределеността на C_2 се определя от стандартно разпространение на неопределеността в n_2 , CF и t_2 [102]:

$$\frac{\sigma(C_2)}{C_2} = \sqrt{\frac{\sigma^2(n_2)}{n_2^2} + \frac{\sigma^2(t_2)}{t_2^2} + \frac{\sigma^2(CF)}{CF^2}}, \quad (2)$$

където $\sigma(n_2)$ е неопределеността на съответното количество трекове, определена чрез неопределеността на трековото изброяване на брутната трекова плътност (Поасонова статистика) и неопределеността на фоновата плътност, като за среден фон тя е $6,3 \pm 2,3 \text{ cm}^{-2}$ [97].

Неопределеността на времето е определена, като се приема, че вероятността е равномерно разпределена в интервала „от – до“ за възрастта на диска. Ако този

интервал е една година (т.е. дискът е датиран с възраст в рамките на една година). Приема се равновероятностно разпределение в едногодишния интервал на несигурност. „Несигурност на датирането“ при това разпределение, стандартното отклонение е 0,289у. Тази неопределеност е използвана за всички дискове, когато датата е установена с точност в рамките на една година. Когато тази дата е установена в рамките на половин година, неопределеността е 0,144у.

При изследванията е използван $CF = 0,0193 \pm 0,0039 \text{ cm}^{-2} / \text{kBq h m}^{-3}$.

Трековете върху първия диск се дължат на радоновото ниво от преди реконструкцията и от радоновото ниво след реконструкцията, настъпила в момента $T[y]$.

Нека означим плътността на трекове, натрупани след реконструкцията с Δn_2 . То е равно на

$$\Delta n_2 = C_2 \cdot CF \cdot T = n_2 \frac{T}{t_2}. \quad (3)$$

Тогава приносът в плътността на трекове върху първия диск Δn_1 , дължащи се на радонов сигнал с първото ниво е:

$$\Delta n_1 = n_1 - \Delta n_2 = \frac{n_1 t_2 - n_2 T}{t_2}. \quad (4)$$

След неговото определяне може да се определи и радоновото ниво преди реконструкцията на жилището. То е:

$$C_1 = \frac{\Delta n_1}{CF(t_1 - T)} = \frac{n_1 t_2 - n_2 T}{CF t_2 (t_1 - T)}. \quad (5)$$

Следователно разликата между средната концентрация преди и след ремонта е:

$$\Delta C = C_2 - C_1 = \frac{1}{CF t_2} \left[n_2 - \frac{n_1 t_2 - n_2 T}{t_1 - T} \right] = \frac{n_2 t_1 - n_1 t_2}{CF t_2 (t_1 - T)}. \quad (6)$$

За да се определи доколко тази разлика е статистически значима, се определя стандартното отклонение $\sigma(\Delta_c)$ на Δ_c чрез формулата за разпространение на неопределеността от горното уравнение и стандартен математически алгоритъм [102]. Основната неопределеност се получава най - вече от неопределеността на пълната и фоновата плътност на трековете (при получаване на нетната плътност на трековете), CF , t_1 , t_2 и T ,

$$\begin{aligned} \sigma^2(\Delta_c) = & \left[-\frac{1}{CF(t_1 - T)} \right]^2 \sigma^2(n_1) + \left[\frac{t_1}{CFt_2(t_1 - T)} \right]^2 \sigma^2(n_2) + \\ & + \left[\frac{n_1t_2 - n_2T}{CFt_2(t_1 - T)^2} \right]^2 \sigma^2(t_1) + \left[-\frac{n_2t_1}{CFt_2^2(t_1 - T)} \right]^2 \sigma^2(t_2) + \\ & + \left[\frac{n_1t_2 - n_2t_1}{CF^2t_2(t_1 - T)} \right]^2 \sigma^2(CF) + \left[\frac{n_2t_1 - n_1t_2}{CFt_2(t_1 - T)^2} \right]^2 \sigma^2(T) . \end{aligned} \quad (7)$$

При 95% доверителен интервал за тази разлика Δ_c доверителният интервал е $\Delta_c - 1,96.\sigma(\Delta_c)$, $\Delta_c + 1,96.\sigma(\Delta_c)$. Ако този интервал е изцяло положителен, може да тълкуваме резултатите като статистически значимо увеличение на средната радонова концентрация. Ако този интервал е изцяло отрицателен, може да тълкуваме резултатите като значимо намаление на средната радонова концентрация.

Изразът за неопределеността на C_2

$$\sigma^2(C_2) = \left[\frac{1}{CFt_2} \right]^2 \sigma^2(n_2) + \left[-\frac{n_2}{CF^2t_2} \right]^2 \sigma^2(CF) + \left[\frac{n_2}{CFt_2^2} \right]^2 \sigma^2(t_2) \quad (8)$$

Неопределеността на C_1 се получава на базата на (5) и преноса на неопределености и също се определя за всеки отделен случай:

$$\begin{aligned} \sigma^2(C_1) = & \left[\frac{1}{CF(t_1 - T)} \right]^2 \sigma^2(n_1) + \left[-\frac{T}{CFt_2(t_1 - T)} \right]^2 \sigma^2(n_2) + \\ & + \left[-\frac{n_1t_2 - n_2T}{CFt_2(t_1 - T)^2} \right]^2 \sigma^2(t_1) + \left[\frac{n_2T}{CFt_2^2(t_1 - T)} \right]^2 \sigma^2(t_2) + \\ & + \left[-\frac{n_1t_2 - n_2T}{CF^2t_2(t_1 - T)} \right]^2 \sigma^2(CF) + \left[\frac{n_1t_2 - n_2t_1}{CFt_2(t_1 - T)^2} \right]^2 \sigma^2(T) \end{aligned} \quad (9)$$

Както беше отбелязано преди, идеалният случай е дисковете да са закупени скоро след реконструкцията на жилището. Всяка двойка дискове са анализирани по методиката, описана по-горе.

V.1.2 Организация на измерванията

За цялото ни изследване бяха като минимум събрани по два диска от жилища, в които са правени енергоспестяващи ремонти в миналото, включващи смяна на дограма. Един диск, който е съхраняван само в жилището от преди ремонта и един, който също е съхраняван само в жилището след ремонта. Времето им на попадане в жилището и моментът на реконструкция се определяше след лична комуникация със собственика на жилището, като искахме дисковете да се датират с точност година или по-добра. Понякога успяхме да научим тези времена с неточност от 3 месеца, а понякога дори и в рамките на месец, което беше отразено в измерванията. И двата диска трябва да са попаднали в жилището като нови. Затова в измерванията ни участват дискове, за които собствениците можеха със сигурност да потвърдят, че са попаднали в жилищата им като нови. Контактното лице трябваше:

- да обясни какво е радон и какви са свързаните с него здравни рискове;
- да увери притежателите, че сътрудничеството е доброволно, безплатно и анонимно; ако се налага могат да се допитат до експерти;
- предостави кратка информация за компакт - дисковия метод;
- да помоли да се предоставят 2 диска - един отпреди смяната на дограмата и един от след това. Дисковете трябваше да могат да бъдат датирани в интервал не по - голям от 1 година.

Направено бе изследване на събраните дискове от 4 населени места - с. Столник (Елин Пелин), с. Петърч (Костинброд), гр. Септември и гр. София. В с. Столник 1 от общо 5 души предоставиха дискове. В с. Петърч 1 от общо 10 души, в гр. Септември 1 от 4 души, а в София 9 от общо 20 души. Трябва да се отбележи, че българското население не е информирано за проблема, свързан с облъчване от радон в сгради. При събираемостта на дисковете беше важно да се уверим, че двата предоставени диска са били в едно и също помещение в дадена сграда.

Важно условие при събираемостта бе при проведена ремонтна дейност в дадена сграда да се предостави минимум един диск преди ремонта, който е с време на престояване в сградата поне една година преди това, а ако е възможно - значително

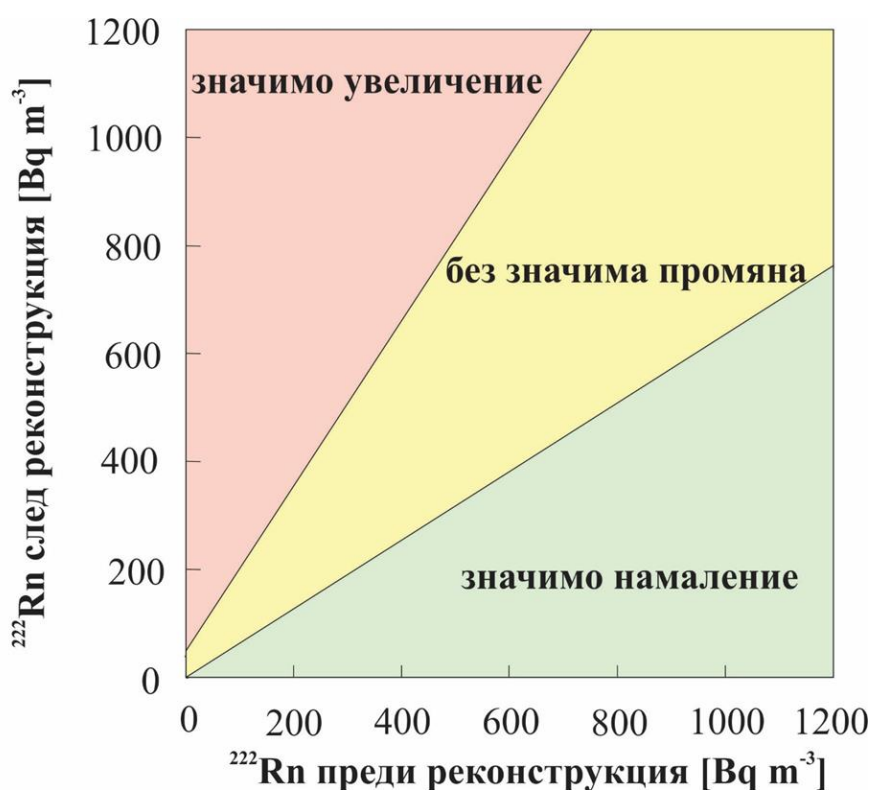
повече. Също така, за да е прицизно изследването, дискът от след ремонта трябва да е доставен в сградата в година, близка до тази на ремонта.

Изследванията бяха проведени в жилищни сгради, в детски градини и в училища.

V.1.3 Резултати и обсъждане

Границата, над която разликата може да се приеме за статистически значима, зависи от времето на експозиция на анализирани дискове и концентрацията на радон преди и след реконструкцията. Чрез вариране на тези параметри беше извършено моделиране и беше оценена способността на този метод да открива промени в концентрацията при 95% ниво на значимост. Като пример на фигура V.2. е представен случай, в който $t_1 = 10\text{y}$, $t_2 = T = 5\text{y}$.

За реализация на това проучване са изследвани 20 стаи в 16 сгради на територията на България. Всички те са били подложени на реконструкция в миналото в границите от преди 0,8 – 10у години преди проучването. При всички тях като минимум е извършена подмяна на дограмата с пластмасова или алуминиева такава. Шестнадесет от стаите са на приземния етаж, 4 са на първия етаж. Една от сградите е с 2 стаи на приземен етаж и 2 стаи на първи етаж. В друга сграда 2 от стаите бяха на партера. По - старите дискове от двата бяха закупени между 1 – 12у (средно 4,3 години) преди реконструкцията. От двайсетте дискове след реконструкция 12 са поставени в реконструираното жилище същата година в която е проведена реконструкцията, 2 на следващата година, 4 след 2 години, а 2 диска след 4 години.

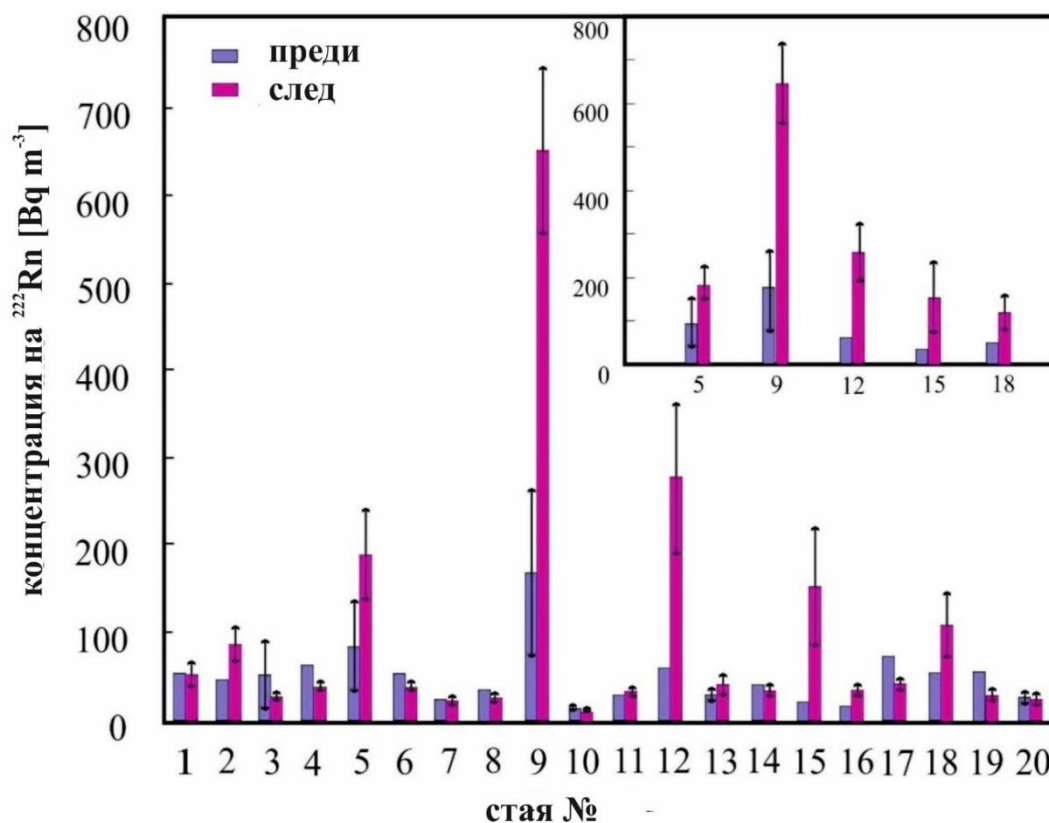


Фигура V.2. Области на откриване на значителни промени в средната концентрация на ^{222}Rn . В илюстрираните случаи $t_1 = 10\text{y}$, $t_2 = T = 5\text{y}$, (точна стойност). Като цяло, тези области и техните граници зависят съществено от средната концентрация на ^{222}Rn , преди и след реконструкцията, t_1, t_2, T , тяхната неопределеност и неопределеността на C_1 и C_2 , с която те са определени.

На фигура V.3 са илюстрирани получените резултати.

В 7 от 20 стаи беше измерено значимо увеличение на радоновото ниво. В останалите 13 не бяха открити значителни промени на радоновото ниво. Значително намаление не е измерено в никое от изследваните помещения. Ако приемем, че датирането е осъществено точно и нямаме неотчетена неопределеност в него, нито едно измерване не показва намаляване на средната радонова концентрация. В 5 от стаите средната радонова концентрация е над 100 Bq m^{-3} , което е долното ниво над което се приема, че е налице радонов проблем WHO (2009) [8].

В 4 от тях се наблюдава значително увеличение (фигура V.3.). За отбелязване е, че само в една от стаите предишното ниво е било над 100 Bq m^{-3} . В останалите 4 стаи радоновият проблем се появява в резултат на реконструкцията.



Фигура V.3. Резултати за концентрацията на ^{222}Rn в 20 жилища преди и след тяхната реконструкция (саниране). Когато грешката не е показана, концентрацията на радон е под минималното ниво на детектиране, тяхното горно ниво е дадено при 95% доверително ниво. На допълнителната графика са представени резултати, в които нивото след реконструкция е над 100 Bq/m^3 .

Ние изследвахме възможността тези промени да се дължат на годишни вариации на нивото на радон или на промяната на средната вътрешна температура след реконструкцията. Вариацията между различни години се очаква да бъде до 40% [103], средно 26% [104]. Поради случайния характер на тези вариации, различията са изгладени през годините и могат да бъдат както положителни, така и отрицателни. Численото моделиране показва, че вероятността за обяснението на резултатите с тези вариации е много малка. От друга страна, температурата може да повлияе на дифузията на радон в компактните дискове. Този ефект е изучен в предишни изследвания

[77,79]. Анализът показва, че наблюдаваните разлики могат да се обяснят само с увеличение на средната температура с повече от 20 градуса. Такова драстично увеличение е нереалистично. Увеличението на тази температура в нискодоходните английски семейства след такава изолация през зимния сезон е около 3 градуса [105]. Ето защо нашето заключение, е че по високото ниво на радон в санираните жилища най-вероятно се дължи на енергийноефективния ремонт.

Характеристиките на сградите са сред факторите, които могат да повлияят върху концентрацията на радон в закрити помещения [98]. С оглед на продължаващата политика за подобряване на енергийната ефективност на съществуващите сгради си заслужава да се изследва ефекта от различните варианти на преустройство. Публикации, които обобщават проследяването на две десетилетия измервания на радон предполагат, че в някои случаи радонът в закрити помещения може да се увеличи значително в къщи след енерго - спестяващо преустройство [100]. Оказва се, че ефектът е специфичен за даден обект и зависи от прилаганите начини/технология. Само систематичните проучвания могат да изяснат конкретните фактори, които могат да повлияят на радона в закрити помещения. Проспективното проучване може да се нуждае от много години, за да приключи успешно. Ние показваме възможностите на CD/DVD метода за извършване на ретроспективни измервания, позволяващи такова изследване да се проведе в кратък срок. Точността им дава възможност да бъдат измерени и промени на това ниво, настъпили в миналото като резултат на някакво събитие.

Използвайки горния подход ние открихме, че след саниране на сгради, включващо подмяна на стара дограма с пластмасова или алуминиева дограма, радоновото ниво в жилището може да се увеличи значително в немалък процент от жилищата. В кратък срок такива измервания могат да осигурят експериментални данни както за изнамиране на радонбезопасни реконструкции на сгради, така и да се проверява и коригира нивото на радон след реконструкция на жилища. В заключение можем да отбележим следното:

- Методът е способен да открие систематична промяна в средните концентрации на радон след направено преустройство на жилище в миналото;

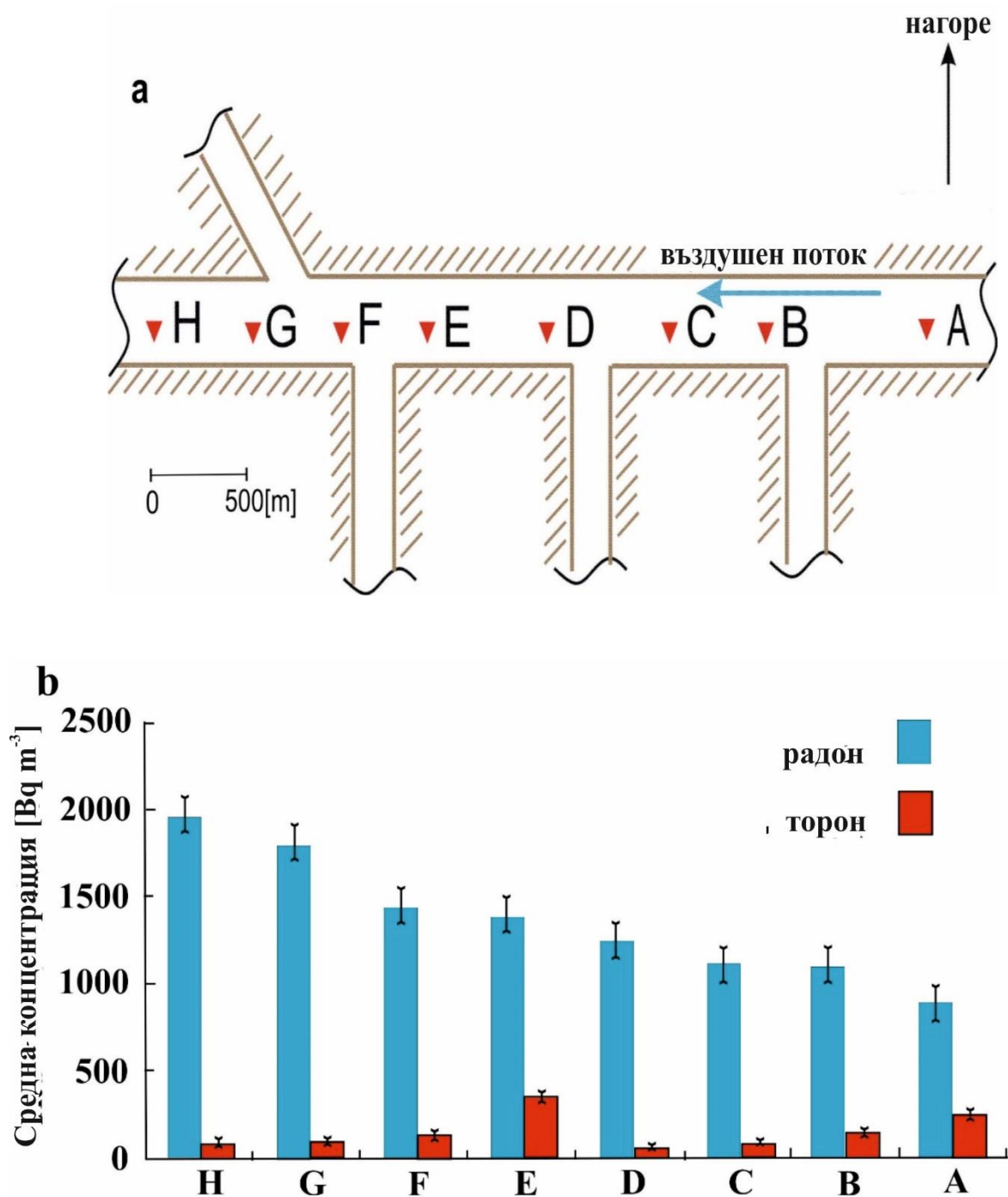
- Пилотните резултати от нашия набор от сгради, които са претърпели замяна на стара дограма с енергоспестяваща PVC дограма показва статистически значимо (с 95% значимост) нарастване на средните концентрации на радон след преустройството в 35% от случаите, без да се наблюдава случай на значимо намаляване. Получените резултати предизвикват известна загриженост за евентуален проблем с радон, свързан с влиянието върху здравето на продължаващата в широк мащаб политика за енергийно-ефективното преустройство на жилища. Най - малко въпросът за радона трябва да бъде разгледан от тази гледна точка и ако това е необходимо, следва да бъдат проведени защитни мерки по отношение на радона в рамките на енергоспестяващото преустройство на жилищата.

Настоящият метод позволява в кратък срок системно проучване на факторите, отговорни за повишаването на радона след преустройството на жилището.

V.2. Диагностика на вентилацията на подземна мина и идентифициране на източници на замърсяване с радон / торон.

Друга възможност за използване на CD/DVD метода е за диагностика и идентифициране на източници на замърсяването на атмосферата в минните галерии с радон и торон. За целта дискове бяха поставени в различни точки по протежение на минните галерии, следвайки посоката на въздушната струя. Реалната схема на изследваната галерия е показана на фигура V.4. След експозиция от 3 месеца, дисковете бяха събрани и обработени.

От фигура V.4 се вижда, че има постоянно увеличение на обемната активност на радона по протежение на галерията, по посока на вентилационната струя докато, обемната активност на торона не показва систематичен ход. За да идентифицираме потенциалните източници на радон, ние анализирахме нарастването на обемната



Фигура V.4. Измерване на замърсяването на атмосферата в минните галерии с радон и торон. (a) Схема на изследвана галерия. Разстоянието от точка А до точка Н е около 3 km. (b) Резултати за радон и торон в различните точки. Източник на замърсяване с радон е идентифициран, с 95% статистическа значимост, между точките F и G.

активност на радона и разликите между детектори в съседни точки при 95% ниво на статистическа значимост. Статистически значима се оказва разликата в обемната активност на радона в точките F и G. Тези нива могат да се обяснят с постъпване на въздух с висока обемната активност на радона по комина между тези 2 точки.

Този подход улесни много тълкуването на резултатите, тъй като показва прехода между стойностите в съседни точки. Стана известен участък от мината от който е налице постъпление в минната атмосфера на въздух замърсен с ^{222}Rn . Тези участъци подлежат също и на геоложко проучване, тъй като една от причините за високото ниво на радон в тях може да бъде наличието на по - висок клас руда в, или в близост до този участък от мината.

Установяване на източниците на замърсяване с радон и торон позволява да се предприемат редица мерки за радиационен контрол и ограничаване на облъчването на миньорите.

ГЛАВА VI

Пасивен детектор за радон с чувствителност в ограничен времеви прозорец

Издадената през 2013г европейска директива [9] изисква държавите-членки на Европейския съюз да определят референтни нива за средно годишна концентрация на ^{222}Rn на работните места, която не трябва да бъде над 300 Bq m^{-3} . На национално ниво това е залегнало в приетата и публикувана в ДВ ПОСТАНОВЛЕНИЕ № 20 ОТ 14 ФЕВРУАРИ 2018, Наредба за радиационна защита [10].

Понастоящем този мониторинг трябва да обхваща много по-голям брой работни места отколкото само в мините. За разлика от минните галерии, повечето работни места, в добивната промишленост където трябва да се започне мониторинг на радона, като цехове, лаборатории, ремонтни работилници офиси и т.н. вътрешната среда е близка до нормалната за човешко обитание. Температурата и влажността там са близки до тези при нормални условия, обаче, персоналът обикновено прекарва само част от деня (напр. 8 часа) в тях. В такива случаи „средно годишното ниво на радон за работещите“ трябва да се отнася до времето на заетост в годината.

До сега пасивните радонови детектори осигуряват сигнал, който е интегриран денонощно за цялото време на експониране. Това може да доведе до грешки в оценките на експозицията на работниците, тъй като нивата на радон могат да варират значително поради естествените дневни вариации и специфичните условия на вентилация (напр. вентилация се включва само през работното време). За да се отговори на това предизвикателство, би било полезно работещите да имат радонови детектори, които са чувствителни към ^{222}Rn само в рамките на определен времеви прозорец (например работното време). В идеалния случай, такъв детектор ще регистрира сигнал само в рамките на работното време и ще има нулева чувствителност през останалото време.

През 2009г. беше предложен нов дизайн на пасивни ^{222}Rn монитори [106], който беше изследван теоретично [107] и експериментално [108,109]. Той използва фолио от материал, който има висока способност за абсорбиране на радон (напр.

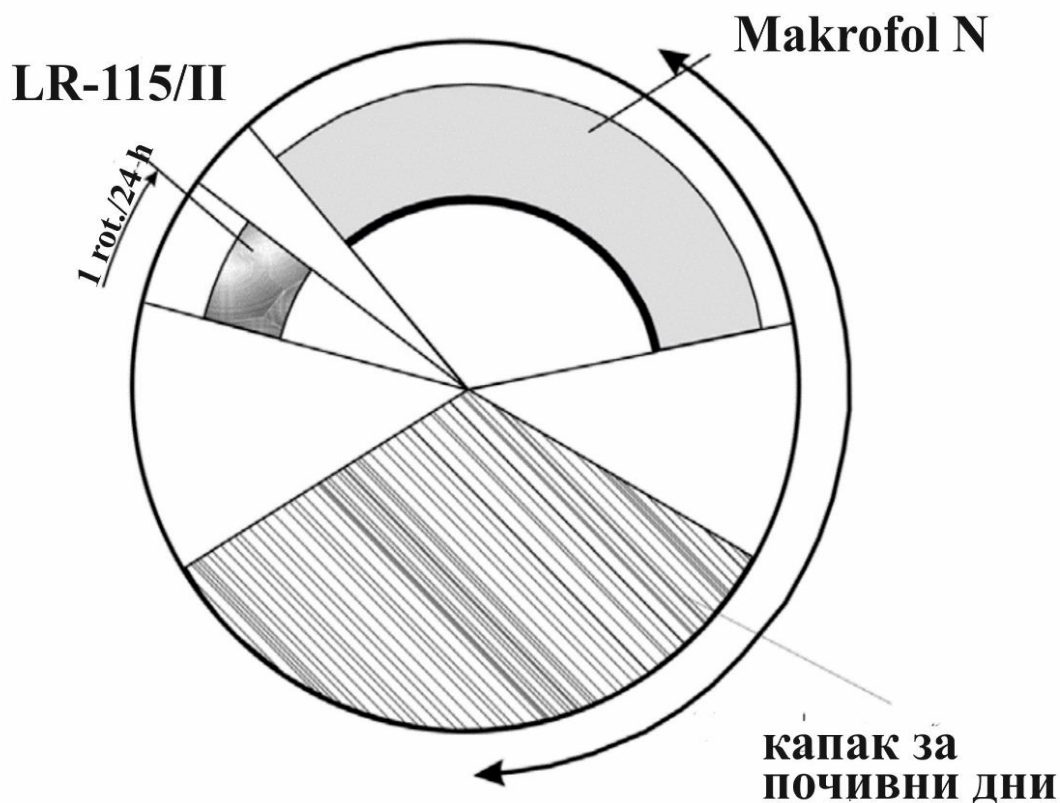
поликарбонат на база бисфенол-А), комбиниран със SSNTD. Накратко SSNTD е поставено пред фолиото, което служи като ^{222}Rn радиатор на α - частици.

Въз основа по тази концепция с наше участие бе предложен нов тип пасивен радон детектор, който кумулира сигнал само през определен период от време всеки ден. Детекторът може да бъде предварително конфигуриран (например да бъде чувствителен само през работното време на наблюдавания персонал). Подходът ни е да използваме сегмент на абсорбера, фиксиран върху металния държач и част от SSNTD който се върти равномерно с 1rot/24h, така че да е обърнат към абсорбера само в рамките на работния прозорец. Представените резултатите от експериментални изследвания и теоретично моделиране позволяват оптимизиране на този радонов детектор.

Засега новият радонов детектор е конструиран за работа в условия на нормална работна среда.

VI.1. Концепция

Основната концепция в новия радонов детектор е да се постави SSNTD пред източника - " радон абсорбатор / радиатор на радон" само през определени интервали от време (напр. работни часове). Има различни технически начини да се постигне това. Тук е показан дизайн, в който детекторът Kodak Pathe LR-115 е сегмент с определени размери, се върти с честота 1 оборот за 24 часа. В рамките на това завъртане, детекторът застава срещу радиатор на радон само в рамките на интересувания ни период (например работното време). Извън този прозорец детекторът е обърнат към повърхността на металния държач. По време на облъчването тази повърхност е покрита с отложени върху нея ДПР и евентуално ДПТ. При попадане върху детектора, енергиите на техните α - частици са по - високи от горния праг на регистрация на следи на този детектор и те няма да произведат следи в него. Допълнителното покритие „капак“ може да "затвори" фолиото по време на празници (фигура VI.1). Поради това сигналът на детектора се получава само



Фигура VI.1. Концептуален дизайн на предложеното пасивно наблюдение с почасово работно време чувствителност към радон, състоящ се от SSNTD детектор (LR-115 / II), който се върти над абсорбер на радон (Makrofol N). Покритието служи за изключване на по - дълги периоди от време като празници. Той не е задължителен.

по време, когато той е обърнат към абсорбера / радиатора на радон, което съвпада с работното време.

Материалът Makrofol N е избран заради неговите отлични характеристики на абсорбция на радон. При стайна температура този материал има коефициент на разпределение (безразмерна мярка за разтворимост) за радон от 112 ± 12 и дифузионна дължина за ^{222}Rn от $39 \pm 1 \mu\text{m}$ [110]. Избраните детектори са от Kodak Pathe LR-115 тип II (енергиен прозорец: $E_{\min} = 1.5 \text{ MeV}$; $E_{\max} = 4.0 \text{ MeV}$ и критичен ъгъл към нормалата на повърхността на детектора 55° (фигура II.3), като подобни стойности са съобщени и от други автори [111]). Енергийният прозорец на регистрацията на използваните детектори е доста под енергиите на α - частиците от дъщерните

продукти на ^{222}Rn и ^{220}Rn (енергията на α - частиците от различни изотопи са дадени в таблица III.4.

Избраното разстояние между абсорбера и детектора е малко (1 – 2 mm), така че α - частиците, излъчвани от части на фолиото, които не са непосредствено над детектора, не могат да достигнат детектора при ъгъл на падане по - малък от критичния и няма да формират трек. Забавянето на α - частиците до подходящата за регистрация енергия става във вътрешния обем на абсорбатора от Makrofol N.

Чрез провеждането на теоретично моделиране и експериментални изследвания се изясни осъществимостта на този подход и се оптимизира по отношение на чувствителност и получаване на сигнал, който следва точно (в рамките на минути) “идеалният”.

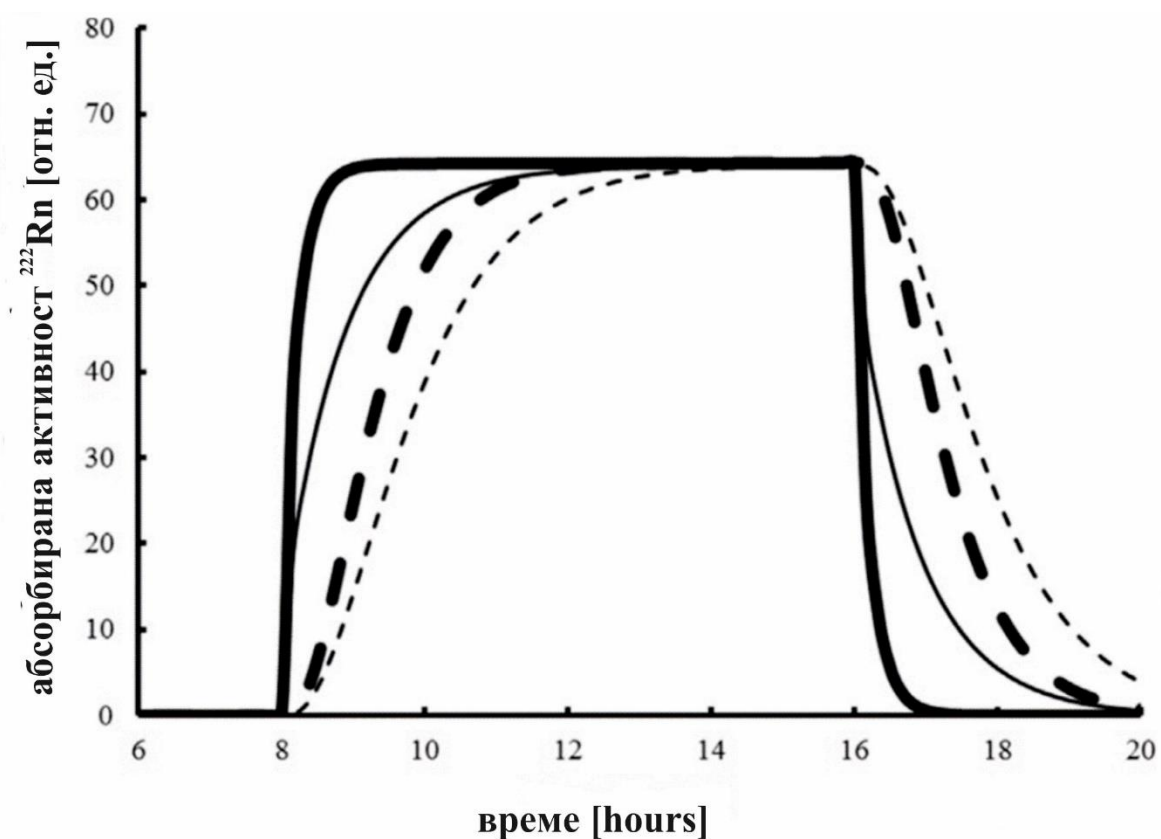
VI.2. Моделиране

Повечето от пасивните детектори, когато се поставят внезапно от "ниски" на "високи" нива на радон (или обратното) демонстрират инерция в отклика. Това е времето необходимо на ^{222}Rn и неговите дъщерни продукти да възстановят равновесието си в обема на абсорбера/детектора. Ако α - частиците на ^{214}Po ($^{214}\text{Bi} + ^{214}\text{Po}$) допринасят за сигнала, това преходно време може да бъде 2 – 3 часа поради по дългият процес на тяхното натрупване и разпадане. Тъй като абсорбиращото фолио служи като "източник" на α - частици, които бомбардират детектора, ние първо моделирахме времевата зависимостта на концентрацията в него дължаща се на абсорбирания ^{222}Rn и неговите дъщерни продукти след началото, по време и след края на експозицията с ^{222}Rn . Както е показано и в други публикации [106,107], в абсорбера вместо едно фолио може да се използва „композилен“ абсорбер. В този случай няколко тънки фолиа се поставят едно върху друго заедно нехерметично, така че радонът може да проникне свободно между тях.

По този начин при запазен обем, ние увеличаваме контактуващата с радон повърхност, в резултат на което абсорбиращият обем и абсорбираната активност се запазват, докато кинетиката на абсорбцията / десорбцията е толкова бърза, колкото тази на тънките фолиа, от които е съставен абсорбатор. Когато фолиото е достатъчно

тънко по отношение на дифузионната дължина на радона вътре в тях, разпределението на абсорбираната активност е практически хомогенно [107].

В нашите изследвания използвахме фолиото на Makrofol N. Процесът на сорбция / десорбция на радон е моделиран с помощта на аналитичните изрази, дадени в [77] и съответната промяна в активността на продукти на разпад (на ^{222}Rn), чрез комбиниране на тези изрази с уравненията на вериги от радиоактивни разпади [112]. Фигура VI.2 илюстрира времевата зависимост на активността на радона и ДПР от фолио с 2 фолия по 5 μm всяко и 10 μm изложени на радон. За времето на моделиране

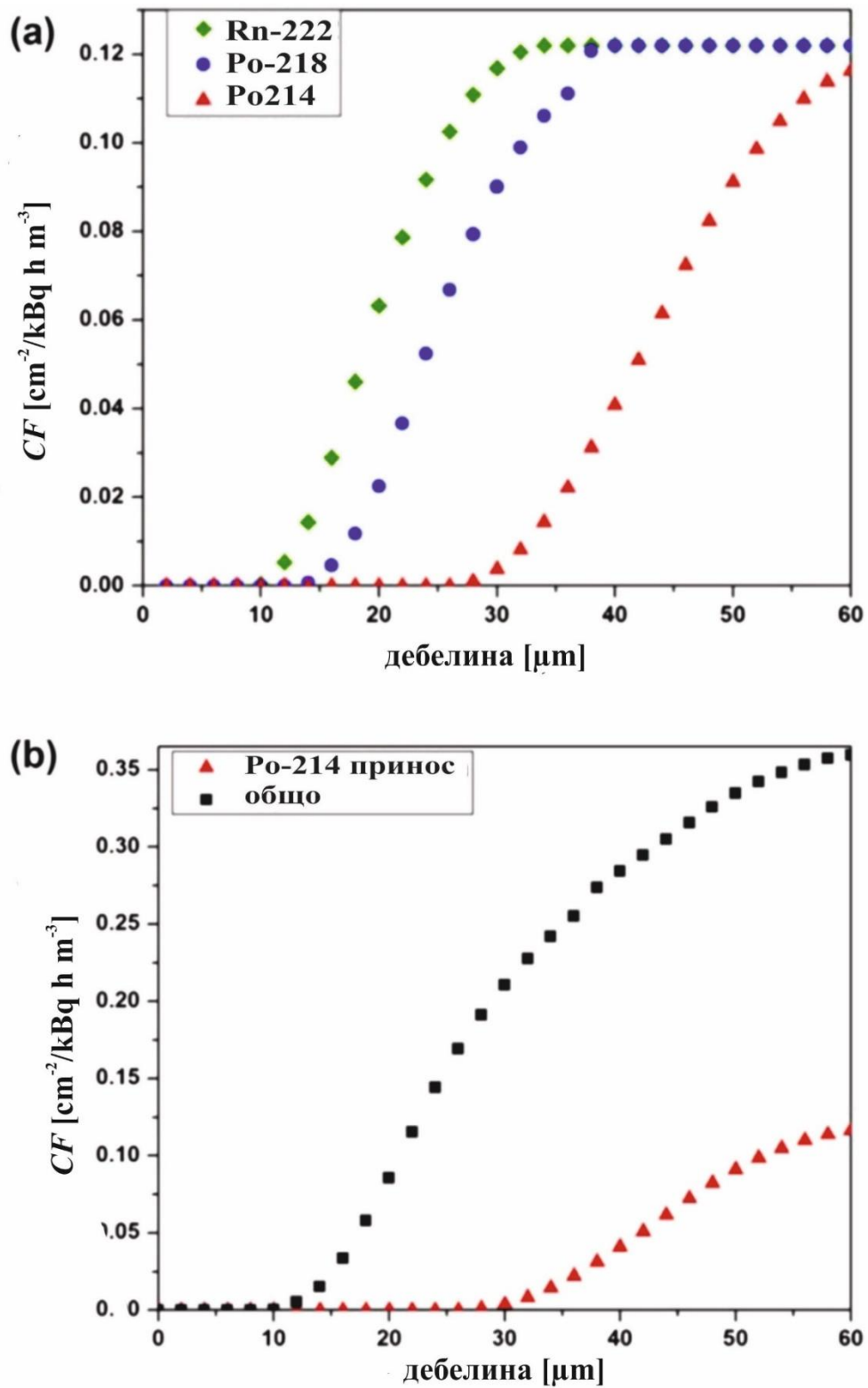


Фигура VI.2. Профилът на активността на радона от фолио ^{222}Rn ; $2 \times 5 \mu\text{m}$ (плътна дебела линия) и $^{214}\text{Bi} + ^{214}\text{Po}$ (пунктирана дебела линия) и 10 μm (тънки линии). В този мащаб профилът на ^{218}Po активността е много близка до тази на ^{222}Rn .

обемната активност в околната среда на ^{222}Rn се счита за константа (не - нулева) в рамките на времеви прозорец от 8:00 - 16:00 h и нула през останалата част от деня. Както се вижда от фигура VI.2, профилът на абсорбираната активност може да бъде

много близък до този на концентрацията на ^{222}Rn в околната среда, когато дебелината на единичното фолио в композитния абсорбер е $5\mu\text{m}$ (или по-малък). Профилът на активността дължаща се на ^{218}Po е много близка до тази на ^{222}Rn , докато активността дължаща се на ^{214}Po ($^{214}\text{Bi} + ^{214}\text{Po}$) се нуждае от повече време, за да достигне равновесие. Ако сигналът който се дължи на ^{214}Po не е дискриминиран, винаги ще има инерция в реакцията на детектора от порядъка на $2 - 3\text{h}$. Въпреки това, в рамките на настоящия подход приносът на α – частиците дължащи се на разпада на ^{214}Po към сигнала на детектора могат да бъдат дискриминирани чрез използване на енергетичния прозорец за регистрация и намиране на подходяща дебелина на композитния абсорбер. Поради взаимодействието със средата вътре в абсорбера на α – частиците, получени от абсорбирания радон и дъщерните му продукти, дебелината на абсорбера влияе върху енергията с която те напускат абсорбера.

Ефективността на регистрацията е моделирана за композитни абсорбери с различна дебелина, приемайки равномерно разпределение на активността в обема на абсорбера. Счита се, че α - частиците се движат в прави линии и се регистрират, ако напуснат абсорбера с енергия която е в рамките на енергийния прозорец на SSNTD. Загубата на енергия в малката въздушна междина между абсорбера и детектора е пренебрегната (по-малко от 0.17 MeV за междина с ширината под 2 mm). За да се изчисли калибровъчният фактор ($CF = \text{плътност на следи} / \text{интегрирана по времето концентрация на радон}$), са взети под внимание ефективността на регистрацията и коефициентът на разпределение на радон в абсорбционния материал, (който характеризира отношението на вътрешната и външна концентрация). Резултатите за CF за всички 3 групи от α - частици са показани на фигура VI.3.a и b.



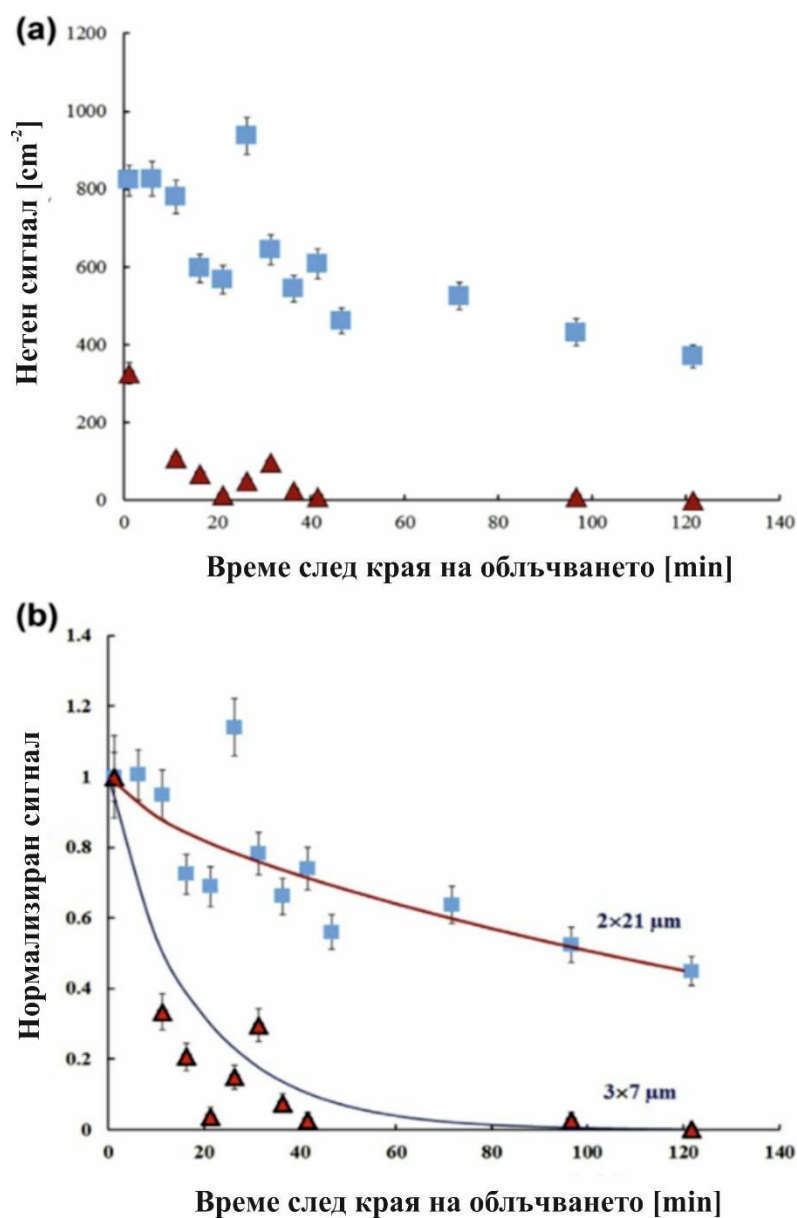
Фигура VI.3. Моделни резултати (получени от доц. Ивелина Димитрова [109]) за калибровъчния коефициент на детектора при различна обща дебелина на абсорбера: а) за отделните нуклиди; б) за общия сигнал и нежелания принос на ^{214}Po .

Както се вижда, когато общата дебелина на абсорбера е по - малка от 30 μm , сигнал се формира само от ^{222}Rn и ^{218}Po . При по - голяма дебелина на абсорбера приносът на ^{214}Po започва да се увеличава (съответно, инерцията в отговорът му също започва да се увеличава). От това следва, че обща дебелина на композитният абсорбер включен в детектора трябва да е по - малка от 30 μm . Той трябва да е изработен от единични фолиа с дебелина по-малка от 10 μm . По този начин, съгналът на детектора ще следва доста точно профила ^{222}Rn концентрация на околната среда.

VI.3. Резултати и обсъждане

Бяха проведени експерименти за проверка на валидността на подхода. В Експериментите са използвани с фолиа с дебелина 7 μm и 21 μm . Те са получени чрез химическо ецване на търговско 43 μm фолио Makrofol N с разтворител от 52% KOH (m / v) и 40% метанол (m / v) при 30 ° C. Когато двете страни на фолиото се обработват с разтвора, дебелината се намалява при скорост от около 2 $\mu\text{m}/\text{min}$.

В първите експерименти композитни абсорбери от 3 $\times$ 7 μm (обща дебелина 21 μm) и 2 $\times$ 21 μm (обща дебелина 42 μm) бяха изложени в малък обем (200 cm^3) на облъчване от ^{222}Rn на високо ниво (около 15 MBq m^{-3}) за 5 дни. След края на експозиция над фолиото бяха поставени парчета от Kodak-Pathe LR-115 / II за 5 min. 5 - минутните експозиции следват непрекъснато една след друга. По този начин се следваше инерцията на системата на абсорбер - детектор. Високото ниво на ^{222}Rn при експозицията доведе до добра статистика на сигнала в детектори, облъчени с α - частици, идващи от фолиото само за интервал от 5 минути. Детекторите бяха ецвани в продължение на 70 минути с 10% NaOH при 60°C и след това се промиваха в продължение на 30 минути във вода и следите бяха броени визуално с микроскоп. Резултатите са илюстрирани на фигура VI.4 а и б. Разликата около два пъти между сигнал за първото измерване на абсорберите с дебелина 3 $\times$ 7 μm и 2 $\times$ 21 μm могат да се обяснят с подобна разлика в общата ефективност на регистрацията за абсорбери с обща дебелина 21 μm и 42 μm (фигура VI.3.). На фигура VI.4.b, сигналят е нормализиран към сигнала на първият детектор от системата за регистрация.

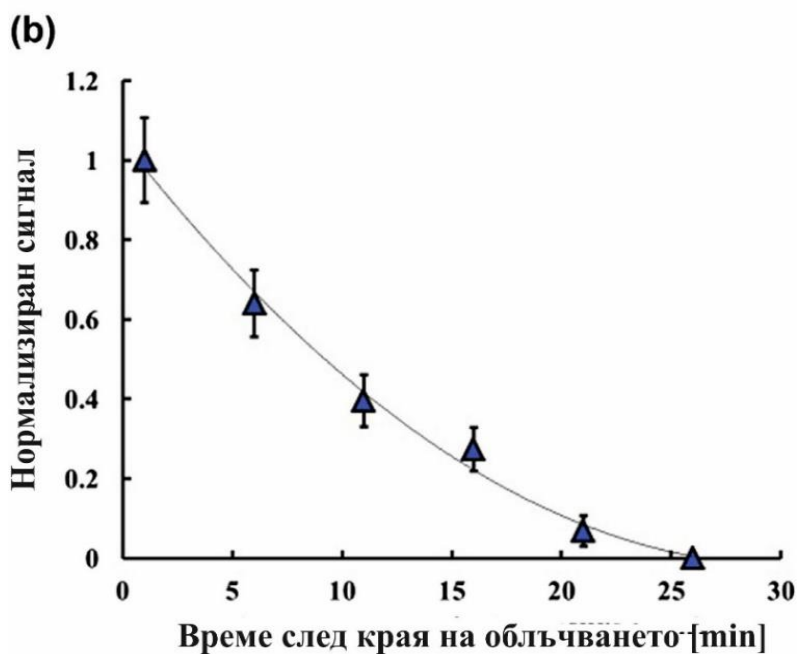
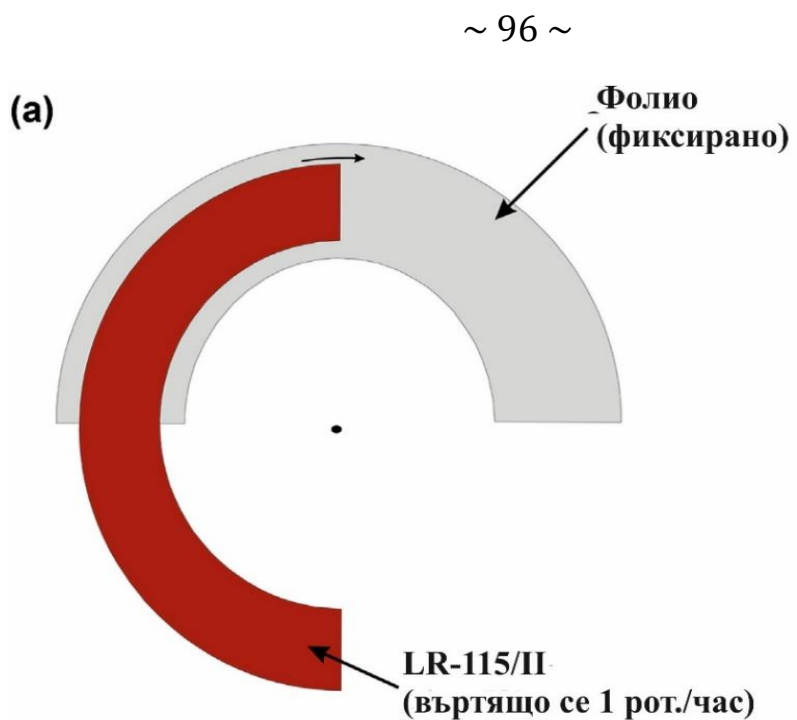


Фигура VI.4. а) Плътности на следите, образувани в Kodak Pathe LR-115 тип II детектори, изложени на Markrofol N радонопоглъщащи фолиа като функция на времето след края на облъчване на фолиото с ^{222}Rn . Данните са за абсорбер, състоящи се от 2 фолио с дебелина $21 \mu\text{m}$ са маркирани с квадрати и за абсорбатор от 3 фолиа с дебелина $7 \mu\text{m}$ са маркиран с триъгълници; б) данните от а) когато са нормализирани към сигнала на първият детектор от системата за регистрация. Линиите представят теоретичните времеви зависимости получени от използвания модел.

Както се вижда, сигналът от абсорбера $3 \times 7\mu\text{m}$ намалява сравнително бързо. За разлика от това, абсорбера $2 \times 21\mu\text{m}$ показва много по-бавно намаляване, поради частичната му чувствителност към α - частици на ^{214}Po и по-бавната радонова десорбция при тази дебелина. Теоретичните очаквания (представени от линиите на фигура VI.4) се съгласуват добре с експерименталните резултати.

Докато горният експеримент ясно показва "инерцията на реакцията" при различните фолия, тя не отразява точно реалните условия на облъчване в предложения прототип (фигура VI.1). В него детекторът не се изправя пред радиатора само за кратко време, а преминава пред него за по - дълги интервали. За да се изследва "инерцията в отговора" в този случай, беше извършен друг експеримент, използвайки схемата, показана на фигура VI.5. В това положение скоростта на въртене се увеличава до 1 rot/h, за да има по-добра разделителната способност по времето в "преходната зона", след като детекторът влезе в зоната на абсорбера/радиатора.

Абсорберът ($3 \times 7\mu\text{m}$), който е поставен върху метал държач, е бил изложен на ^{222}Rn при същите условия като тези в предишния експеримент. След края на експозицията, той бързо се отстранява и поставя под детекторния сегмент, който се върти (с часовников механизъм) с 1 rot/h. Позицията му беше избрана по такъв начин че детекторът да започне да навлиза в областта на абсорбера 1min след края на облъчването му с ^{222}Rn . "Времето за влизане" на всяка точка от детекторът зависи от ъгловото му положение спрямо предната линия на детектор. След като детектора направи едно пълно завъртане веднага след това е отстранен и ецван. Резултатите са показани на фигура VI.4 б. Както се вижда времето, за което сигналът намалява до 50% от първоначалната си стойност е около 10 min. Следователно влиянието на абсорбираният радона след повече от 20 минути преди „стартовото време“ може да бъде пренебрегнато. По този начин „прозорецът за отговор“ на детектора може да бъде направен близък до идеалния. Това може допълнително да се подобри чрез използване на фолио за абсорбера по тънки от $7\mu\text{m}$ в радиаторния пакет. Чувствителността на метода се оценява, като се използва подходът на Curtie [88], а типичната фонова плътност на следите, които наблюдаваме с нов Kodak Pathe LR-115



Фигура VI.5. а) Експериментална концепция. Първоначално детекторът започва да преминава пред фолио (композилен абсорбер $3 \times 7 \mu\text{m}$. б) Нормализирана плътност на следите в различни сектори на детектора, които достигат до фолиото в различни моменти след края на излагането на фолиото на радон.

тип II (с детектори, използвани в нашия експеримент е $26 \pm 2 \text{ cm}^{-2}$). Ако следите от детектора с площ 2 cm^2 се преброят, минималната обемна на активност на ^{222}Rn с абсорбер с обща дебелина $30 \mu\text{m}$, е около 15 Bq m^{-3} за една година експозиция (сигналът е събрани през 2000 работни часа) или около 60 Bq m^{-3} за 3 месеца на експозиция. Тези стойности са значително под референтната стойност от максимум 300 Bq m^{-3} за работни места [10]. Затова представеният тук концептуален подход заслужава по-нататъшни усилия за изграждане на радонов детектор подходящ за работни места. Чувствителността може да бъде допълнително подобрена чрез използване на детектори / с режими на ецване/, при които прозорецът за откриване на енергия е по-широк от $1.5 - 4.0 \text{ MeV}$ както е в настоящия случай. Важното е да се запази горният праг на енергийния прозорец малко по-ниско от 6.0 MeV за да се избегне регистрирането на α – частици от радон /торон дъщерните продукти от повърхността на металната плоча. На този пилотен етап устройството не беше тествано при екстремни условия на околната среда (например, такива в подземните рудници).

VI.4. Заключение

Този метод демонстрира, че чрез използване на фолия от материали с високи абсорбционни свойства за поглъщане на радон (например Makrofol N) и въртящ се SSNTD, може да бъде конструиран пасивен времеви радонов детектор с практически безинерциална чувствителност към радон. Използва се абсорбер, направен като пакет от тънки фолия и SSNTD с подходящ енергиен прозорец (в настоящия случай Kodak-Pathe LR-115 / II). Представените резултати показват, че е оптимално да се използва композитен абсорбер с обща дебелина $30 \mu\text{m}$, съставен от фолия с дебелина $7 \mu\text{m}$ или по-тънки. Представените експериментални резултати показват приложимостта на подхода. Очакваната минимална концентрация на активност, която може да се установи (MDAC) за предложения ^{222}Rn детектор е около 15 Bq m^{-3} за експозиция на работното време (2000 h / година) или около 60 Bq m^{-3} за 3-месечна експозиция (500

h). Резултатите от това пилотно проучване показват, че чрез предложеният подход, може да се създаде радонов детектор за наблюдение на работно място с времеви прозорец на чувствителност. На този етап тези детектори са планирани най-вече за работни места със среда близка до нормалната за живеене. За да се разшири методът към места с по-тежка околна среда (мини, минерални извори, пещери и др.) ще бъдат необходими допълнителни експерименти и техническо усъвършенстване.

VII. ГЛАВА

Заключение и приноси на дисертацията

Изследванията в тази дисертация бяха мотивирани от необходимостта да се намери прост и надежден метод за кумулативни измервания на радон и торон в подземни обекти-главно подземни мини и пещери, но също така и други обекти (тунели, подземни складове и хранилища и пр.) Общото в тези обекти е, че се характеризират с особени условия на въздушната среда: висока влажност, високи нива на запрашеност, отпадни и взривни газове (за мините), взривни вълни, които могат да увредят детекторите, водни капки и пръски, които могат да ги намокрят и пр. Всичко това прави традиционно използваните за мониторинг на радон и торон в сгради детектори трудно използваеми в подземна среда. Вниманието ни беше насочено към използване на CD/DVD метода за кумулативни измервания на радон и торон. Проведените в продължение на няколко години целеви изследвания в лабораторни и реални условия показаха, че методът е приложим дори в най-сурови условия и може да се използва за масови измервания, включително за диагностика и идентифициране на източници на замърсяване с радон на рудничния въздух. В хода на изследванията бяха предложени и/или изследвани методи, които могат да намерят приложения и за изследвания в жилища, надземни работни места и др. Основните приноси на дисертационния труд имат научно-приложен характер и са следните:

1. За пръв път са проведени измервания на радон и торон в подземни условия посредством експониране на CD/DVD в подземните галерии. Установено е приложимостта на метода и е наблюдавано добро съвпадение с резултати, получени с традиционни методи, където такова сравнение бе възможно да се направи. За пръв път е експериментално установено, че намокряне на повърхността на CD/DVD, при което е налице тънък воден филм върху повърхността на едиска не оказва влияние върху резултатите за радон. Не е установена корелация между кумулативните концентрации на двата изотопа в подземни условия.

2. Предложен е метод за идентифициране на източници на замърсяване с радон и торон в подземни изработки, посредством анализ на два или повече CD/DVD, поставени в различни точки. Посредством този метод е идентифициран източник на замърсяване на въздуха с радон в подземна галерия.
3. За първ път посредством анализ на два CD/DVD експонирани ретроспективно в различни времеви интервали е изследвано влиянието на енергоспестяващите ремонти върху нивата на радон в сгради. В 35% от случаите е установено статистически значимо повишаване на нивата на радон след проведено саниране, без да е намерен случай на тяхното значимо намаляване.
4. Предложен е метод за кумулативни измервания на радон на работни места, при който детекторът регистрира сигнал само в определен времеви прозорец (например в работно време). Направени са пилотни изследвания, показващи потенциал за приложимост на метода.

Литература

- [1]. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Sources and effects of ionizing radiation. *UN Publications*, New York, NY, USA, (1993).
- [2]. Paracelsus (1567). Von der Bergsucht und anderen Bergkrankheiten; s. Schriften aus dem Gesamtgebiet der Gewerbehygiene, Neue Folge, Heft 12. J. *Springer*, Berlin (1925).
- [3]. Agricola G. (1556) De Re Metallica, Libri VI, Basle 1556. English translation by H.C. and L.H. Hoover, *Dover Publications*, New York (1950).
- [4]. Haerting F. H. and Hesse W. Der Lungenkrebs, die Bergkrankheit in den Schneeberger Gruben. V. Gericht. *Med. Off. Gesund Wes.* 30 (1879) 296-309 and 31 (1879) 102-132, 313-337.
- [5]. Ludewig P, Lorensen E. Untersuchungen der Grubenluft in den Schneeberger Gruben auf den Gehalt von Radium-Emanation. *Z. Phys.* 22 (1924) 178-185.
- [6]. Bale W. F. Hazards associated with radon and thoron. Unpublished memorandum to the US-AEC, March 14, 1951, reprinted in *Health Phys.*, 38 , (1980) 1062-1066 .
- [7]. Bochicchio F. Radon epidemiology and nuclear track detectors: Methods, results and perspectives. *Radiat. Meas* 40, (2005) 177–190.
- [8]. World Health Organization. WHO handbook on indoor radon: a public health perspective. *WHO press, Geneva, Switzerland*, (2009).

- [9]. Council Directive 2013/59/EURATOM of 5 December 2013. *Official Journal of the European Union* L 13/17, 1, (2014).
- [10]. Наредба за радиационна защита . *Държ. в-к.* 20.02, (2018).
- [11]. Lubin J.H. et al. Adjusting lung cancer risks for temporal and spatial variations in radon concentration in dwellings in Gansu Province. *China Radiat. Res.*, 163(5), (2005) 571–579,.
- [12]. Zhang Z., Smith B., Steck D.J., Guo Q., and Field R.W. Variation in yearly residential radon concentrations in the Upper Midwest. *Health Phys.*, 93(4), (2007) 288–297.
- [13]. 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).
- [14]. Пресиянов Д., Димитров М., *Доклади на БЯД* 3(1), (1998) 39-43.
- [15]. Пенчев П. Приносъ към методите за количествено определяне на радия и радиоактивността на някои минерални води в България. *Сп. БАН, Природни науки.* IX 1-44 (1914).
- [16]. Uzunov I., Dimitrov M., Steinhausler F. Environmental radiation levels and occupational exposure due to uranium mining and milning operations in Bulgaria. *Radiat. Prot. Dosim.* 45, (1992) 141-143.
- [17]. Димитров М.,Пресиянов Д., *Доклади на БЯД* 3(1), (1998) 44-40.
- [18]. James A.C. 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).

- [19]. Vanmarcke H., Janssens A., Raes F., Proffijn A., Berkvens P., and Van Dingenen R.. 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).
- [20]. Darby S et al. Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies. *BMJ*, 330(7485), (2005) 223-227
- [21]. Darby S 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*: (2006) 1-83.
- [22]. Krewski D et al. Residential radon and risk of lung cancer: a combined analysis of 7 North American case-control studies. *Epidemiology*, 16, (2005) 137-145.
- [23]. Krewski D, Lubin JH, Zielinski JM, Alavanja M, Catalan VS, Field RW, et al. A combined analysis of North American case-control studies of residential radon and lung cancer. *J Toxicol Environ Health A* 69(7–8), (2006) 533–597,
- [24]. Baverstam U. and Swedjemark G-A.. Where are the errors when we estimate radon exposure in retrospect. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 36(2/4), (1991.) 107–112,
- [25]. Lubin J.H., Boice Jr., and Samet J.D.. Errors in exposure assessment, statistical power and the interpretation of residential radon studies. *Radiat. Res.*, 144, (1995) 329–341.
- [26]. Samuelsson C.. Radon retrospective measurements. *Int. Congr. Ser.*, 1276, (2005) 66–71.
- [27]. Oberstedt S. and Vanmarcke H.. Volume traps - a new retrospective radon monitor. *Health Phys.*, 70(2), (1996) 222–226.

- [28]. Paridaens J., Vanmarcke H., Jacobs K., and Zunic Z.. Retrospective radon assessment by means of ^{210}Po activity measurements. *Appl. Radiat. Isot.*, 53, (2000) 361–364.
- [29]. Paridaens J., Vanmarcke H., Zunic Z., and McLaughlin J.P.. Field experience with volume traps for assessing retrospective radon exposures. *Sci. Total Environ.*, 272, (2001) 295– 302.
- [30]. Fleischer R.L.. Serendipitous dosimetry - an opportunity and an opportunity lost. *Health Phys.*, 52, (1987) 219–221.
- [31]. Hadley S.A., Meyer N.R., Fleischer R.L., and Cavallo A.. Eyeglass lenses for personal radon dosimetry. *Health Phys.*, 79, (2000) 242–250.
- [32]. Fleischer R.L., Meyer N.R., Hadley S.A., MacDonald J., and Cavallo A.. Personal radon dosimetry from eyeglass lenses. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 97(3), (2001) 251–258.
- [33]. Pressyanov D, Van Deynse A, Buysse J, Poffijn A, Meesen G. Polycarbonates: a new retrospective radon monitor. *Proc. of IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe, Budapest*,: (1999) 716-722.
- [34]. Pressyanov D, Buysse J, Poffijn A, Meesen G, Van Deynse A. Polycarbonates: a long-term highly sensitive radon monitor. *Nucl Instrum Methods A* . 447, (2000) 619-621.
- [35]. Pressyanov D, Buysse J, Van Deynse A, Poffijn A, Meesen G. Indoor radon detected by compact discs. *Nucl Instrum Methods A* 457 (2001) 665-666
- [36]. Pressyanov D., “Retrospective measurements of thoron and radon by CDs/DVDs: a model approach,” *Radiat. Prot. Dosim.*, 149, (2012) 141-145.
- [37]. Georgiev S., Dimitrova I., Pressyanov D., and Mitev K., Retrospective Rn-220 Measurements by Compact Discs, *IEEE TRANSACTIONS ON NUCLEAR SCIENCE*, VOL. 63, NO. 1, (2016).

- [38]. International Commission on Radiological Protection. Protection Against Radon-222 at Home and at Work. *ICRP Publication 65. Annals of the ICRP* 23, (1993) (2).
- [39]. Synnott H. and Fenton D., ERRICCA 2 Report: An Evaluation of Radon Reference Levels and Radon Measurement Techniques and Protocols in European Countries. *Radiological Protection Institute of Ireland*, (2005).
- [40]. Zielinski J. M. and Carr Z. Meeting Report of The 1st Meeting of National Experts for WHO's International Radon Project – Geneva, Switzerland. (2005) 17-18.
- [41]. Przyborowski S. and Ronhsch W.. Putting the ICRP recommendations on radon into national practice: Possibilities and problems. *Env. Internat.*, 22, (1996.) 1093–1097.
- [42]. Tokonami S., Why is ^{220}Rn (thoron) measurement important? *Radiat. Prot. Dosim.* 141 (2010) 335-339.
- [43]. Young D. A. Etching of radiation damage in lithium fluoride. *Nature* 182 (1958) 375-377.
- [44]. Fleischer RL, Price PB and Walker RM. Solid state detectors: *Applications to nuclear science and geophysics*. Ann. Rev. Nucl. Sci. 15 (1965) 1-28.
- [45]. Bonchev T. et al. A rapid method for investigation of surface alpha-contamination. *Nucl. Instrum. Meth. A* 337 (1993) 204-210.
- [46]. Gazibarov V., personal communication (1992).
- [47]. Durrani S.A. and Bull R.K. Solid state nuclear track detection principles, methods and applications. *Pergamon Books Ltd., Oxford, UK*, (1987).
- [48]. Гинев Г. Дипломна работа, Физически факултет, СУ (1996).
- [49]. Nikolaev V. A., Ilic R. Etched track radiometers in radon measurements: A review. *Radiat. Meas.* 30 (1999) 1-13.

- [50]. Nikezic D., Yu K.N. Formation and growth of tracks in nuclear track materials. *Mater. Sci. Eng. R* 46, (2004), 51-123.
- [51]. Lark N. L. Spark scanning for fission fragment tracks in plastic foils. *Nucl. Instr. Meth.*, 67, (1968) 137–140.
- [52]. Khan H. A. and Durrani S. A. Electronic counting and projection of etched tracks in solid state nuclear track detectors (SSNTD). *Nucl. Instr. Meth.*, 101, (1972), 583–587.
- [53]. Chou H. P., Johnson R. H., and Cliekman F. M.. An automatic fission track scanner. *Nucl. Instr. Meth.*, 185, (1981) 359–371.
- [54]. Azimi-Garakani D.. Intercomparison of automatic fission track counting systems. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, 225, (1984) 101–103.
- [55]. Cross W. G. and Tommasino L. A rapid reading technique for nuclear particle damage tracks in thin foils. *Rad. Eff. Def. Solids*, 5, (1970) 85–89.
- [56]. M. M. Monnin. Methods of automatic scanning of SSNTDs. *Nucl. Instr. Meth.*, 173, (1980) 63–72.
- [57]. Tripier J., Oppel R., Remy G., and Debeauvais M.. Fast-neutron dosimetry by means of a cellulose-nitrate detector. *Nucl. Instr. Meth.*, 125, (1975) 487–489.
- [58]. Bean C. P., Doyle M. V., and Entinel G.. Etching of submicron pores in irradiated mica. *J. Appl. Phys.*, 41, (1970) 1454.
- [59]. Harvey J. R. and Weeks A. R.. A neutron dosimetry system based on the chemical etch of CR-39. *Int. J. Rad. Appl. Instr., Sec. D: Nucl. Tracks Rad. Meas.*, 12(1-6): (1986), 629 – 632.

- [60]. Popov P. and Pressyanov D. Track density assessment by obstructed total internal reflection of a laser beam. *Rad. Meas.*, 27, (1997) 27–30.
- [61]. Steele J. D., Bhakta J. R., Tanner R. J., and Bartlet D. T. Development of a reader for track etch detectors based on a commercially available slide scanner. *Rad. Meas.*, 31, (1999) 179–184.
- [62]. Tsankov L., Pressyanov D., Mitev K., Georgiev S., and Dimitrova I.. Automatic counting of chemically etched tracks by means of a computer scanner. *Rad. Meas.*, 39, (2005) 557–559.
- [63]. Rad. Elec. Inc. Developers of the E-REM[®] system for radon measurement. radelec.com
- [64]. Kotrappa P. Long term stability of electrets used in electret ion chamber. *J. Elstat.*, 66, (2008.) 407–409.
- [65]. Sorimachi A., Takahashi H., and Tokonami S.. Influence of the presence of humidity, ambient aerosols and thoron on the detection responses of electret radon monitors. *Rad. Meas.*, 44, (2009) 111–115.
- [66]. <https://www.airthings.com>
- [67]. Möre H. & Hubbard L.M. ²²²Rn absorption in plastic holders for alpha track detectors: a source of error. *Radiat. Prot. Dosim.* 74, (1997) 85-91.
- [68]. Pressyanov D. Dissertaion for acquiring the scientific degree of Doctor of the Physical Sciences. SU “St. Kliment Ohridski” (2012).
- [69]. Vancraeynest G., Franchoo S., Huyse M., and Moons R.. Optimisation and modelling of electrochemically etched polycarbonate track detectors. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 129, (1997) 65–72.

- [70]. Vanmarcke H. and Janssens A.. Study of the properties of electrochemically etched alphatracks in a polycarbonate foil used in a radon diffusion chamber. *Nucl. Tracks*, 12, (1986) 689–692.
- [71]. Fleischer R. L. Serendipitous radiation detectors. *Am. Sci.* 90, (2002) 324-331.
- [72]. Pressyanov D., Mitev K., Georgiev S., and Dimitrova I.. Radon mapping by retrospective measurements - an approach based on CDs/DVDs. *J. Environ. Radioact.*, 10, (2010) 821–825.
- [73]. Mitev K., Madzhunkov Y., Gerganov G., Dimitrova I., Georgiev S., & Pressyanov D. (2009). Automatic Counting of Electrochemically Etched Tracks in Compact discs. Application to Retrospective Measurements of Rn-222 *IEEE Trans, Nucl. Sci* 57, (2009) 300-308.
- [74]. Al-Najjar S. A. R., Bull R. K., and Durrani S. A.. Electrochemical etching of CR-39 plastic: applications to radiation dosimetry. *Nucl. Tracks*, 3, (1979) 169–183.
- [75]. Al-Najjar S. A. R. and Durrani S. A.. Irradiation fluence: an essential parameter in the optimization of ECE conditions. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 8, (1984) 99–103.
- [76]. Turek K. and Dajko G.. Effect of particle fluence on track diameter and response of electrochemically etched SSNTD. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 8, (1984) 121–124.
- [77]. Pressyanov, D. Modelling a ^{222}Rn measurement technique based on absorption in polycarbonates and track – etch counthing. *Health Phys.*, 97, (2009) 604-612.
- [78]. Tommasino, L., Tommasino M.C., New methods and apparatus for the long-term measurement of large radon concentrations indors, in soil, in water, and/or aqueous media. Italian Patent No. RM 2008 A, (2008) 429.

- [79]. Pressyanov D., Buysse J., Poffijn A., Meesen G., and Van Deynse A.. The compact disk as radon detector - a laboratory study of the method. *Health Phys.*, 84, (2003) 642–651.
- [80]. De Vos K. Ontwikkeling van een retro- en prospectieve radondetector gebaseerd op de radonabsorptie in polycarbonaten. Diploma thesis, University of Ghent; (in Dutch), (2000).
- [81]. Pressyanov D.. Nuclear track detectors: Design, methods and applications., chapter Nuclear tracks in polycarbonates with high radon absorption ability: Opportunities for measuring ^{222}Rn . *Nova Science Publishers, Inc., Hauppauge, NY, USA*, (2010).
- [82]. Pressyanov D, Buysse J, Poffijn A, Van Deynse A, Meesen G. Integrated measurements of ^{222}Rn by absorption in Makrofol. *Nucl Instrum Methods A* 516, (2004) 203-208.
- [83]. Buysse J., personal communications (2002).
- [84]. Dimitrova, I., Pressyanov, D., Georgiev, S. & Yankov, P. Logistic of surveys of retrospective radon concentrations by home-stored CDs/DVDs. *Radiat. Prot. Dosim.* 145, (2011) 300-304.
- [85]. Димитрова И. Измерване на ^{222}Rn във въздушна и водна среда чрез абсорбция в поликарбонати. Дисертация, СУ, Физически факултет (2011).
- [86]. Pressyanov D., Dimitrov D., Dimitrova I., Georgiev S., Mitev K. Novel approaches in radon and thoron dosimetry. *AIP Conf. Proc.*, 1607, (2014) 24-33.
- [87]. Georgiev S., Dimitrova I., Pressyanov D., Mitev K.. Retrospective Rn-220 Measurements by Compact Disc. 2012 *Nuclear Science Symposium, Los Angeles, CA, USA, IEE-NSS Conf. record*, art.no.6551102, (2012) 250-252.
- [88]. Currie L.A.. Limits for qualitative detection and quantitative determination: application to radiochemistry. *Anal. Chem.*, 40, (1968) 586–593.

- [89]. Бошкова Т.. Граници на детектиране и минимална детектеруема активност. *Годишник на СУ "Св. Климент Охридски"*, 99, (2006) 121–140.
- [90]. Pressyanov D., Dimitrova I., Georgiev S., Mitev K., "Pilot experiments on retrospective thoron measurements by CDs/DVDs," *Radiat. Meas.* vol. 50, (2013) 218-222.
- [91]. Pressyanov D., Dimitrov D., Dimitrova I., Georgiev S., and Mitev K.. Novel approaches in radon and thoron dosimetry. *AIP Conference Proceedings*. 1607, (2014) 24 .
- [92]. Dimitrov D., Pressyanov D. The CD/DVD method as a tool for the health physics service and ventilation diagnostics in underground mines. *Radiation Protection Dosimetry* 181 (2018) 30-33.
- [93]. Clever, H. L., Ed. Krypton, xenon and radon-gas solubility. In: *Solubility Data Series (Oxford, UK: Pergamon Press)* 2. Vol. 18. (1979).
- [94]. Pressyanov D., Mitev K., Dimitrova I, Georgiev S. Solubility of krypton, xenon and radon in polycarbonates. Application for measurement of their radioactive isotopes. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res Sect. A.* (2011) 323-328.
- [95]. Tommasino, L. et al. An international cooperation by using an all-encompassing passive radon monitor. *Radiat. Prot. Dosimetry*. 177, (2017) 12–15.
- [96]. Pressyanov D., Dimitrov D., Georgiev S., Dimitrova I.. Tests of CDs/DVDs as Passive Radon and Thoron Detectors for Mines and Caves *IEEE (NSS/MIC) San Diego, CA, USA*, (2015).
- [97]. Dimitrova I., Pressyanov D., Georgiev S., and Yankov P. Logistic of surveys of retrospective radon concentrations by home-stored CDs/DVDs. *Radiat. Prot. Dosim.*, 145(2-3), (2011) 300–304.

- [98]. Gunby, J.A., Darby, S.C., Miles, J.C.H., Green, M.M.R., Cox, D.R.,. Factors affecting indoor radon concentrations in the United Kingdom. *Health Phys.* (1993) 64.
- [99]. Budnitz, R.J., Berk, J.V., Hollowell, C.D., Nazaroff, W.W., Nero, A.V., Rosenfeld, A.H., Human disease from radon exposures: the impact of energy conservation in residential buildings. *Energy Build.* (1979.) 2.
- [100]. Slezakova, N., Navratilova Rovenska, K., Tomasek, L., Holecek, J., Short- and long-term variability of radon progeny concentration in dwellings in the Czech Republic. *Radiat. Prot. Dosim.* 53, (2011) 334-341.
- [101]. Steck, D.J., Annual average indoor radon variations over two decades. *Health Phys.* 96, (2009) 37-47.
- [102]. Taylor B. N., Kuyatt C. E. Guidelines for evaluating and expressing the uncertainty of NIST measurement results. Gaithersburg, MD: *National Institute of Standards and Technology; NIST Technical Note* (1994).1297.
- [103]. Hunter, N., Howarth, C.B., Miles, J.C.H., Muirhead, C.R., Year-to-year variations in radon levels in a sample of UK houses with the same occupants. *Radioact. Environ.* 7, (2005) 438-447.
- [104]. Steck, D.J., Annual average indoor radon variations over two decades. *Health Phys.* 96, (2009) 37-47.
- [105]. Hong, S.H., Gilbertson, J., Oreszczyn, T., Green, G., Ridley, I., A field study of thermal comfort in low-income dwellings in England before and after energy efficient refurbishment. *Build. Environ.* 44, (2009) 1228-1236.
- [106]. Tommasino L. Radon film-badges versus existing passive monitors based on track etch detectors. *Nukleonika*, 55, (2010) 549-553.

- [107]. Pressyanov, D. Modeling response of radon track detectors with solid absorbers as radiators. *Radiat. Meas.* 46, (2011.) 357–361.
- [108]. Pressyanov, D., Georgiev, S., Dimitrova, I., Mitev, K. Experimental study of the response of radon track detectors with solid absorbers as radiators. *Radiat. Meas.* 50, (2013) 141–144.
- [109]. Pressyanov D., Dimitrov D., Dimitrova I., Passive radon monitors with part-time sensitivity to radon . *Radiation Measurements* 118 (2018) 72–76.
- [110]. Mitev, K., Cassette, P., Georgiev, S., et al.,. Determination of absorption ^{222}Rn properties of polycarbonate foils by liquid scintillation counting. Application to measurements. *Appl. Radiat. Isot.* 109, (2016) 270 –275.
- [111]. Barillon, R., Fromm, M., Chambaudet, A., Marah, H., Sabir, A. Track etch velocity study in a radon detector (LR 115, cellulose nitrate). *Radiat. Meas.* 28, (1997) 619–628,.
- [112]. Pressyanov, D. Short solution of the radioactive decay chain equations. *Am. J. Phys.* 40, (2002) 444–445.

Статии с участието на дисертанта:

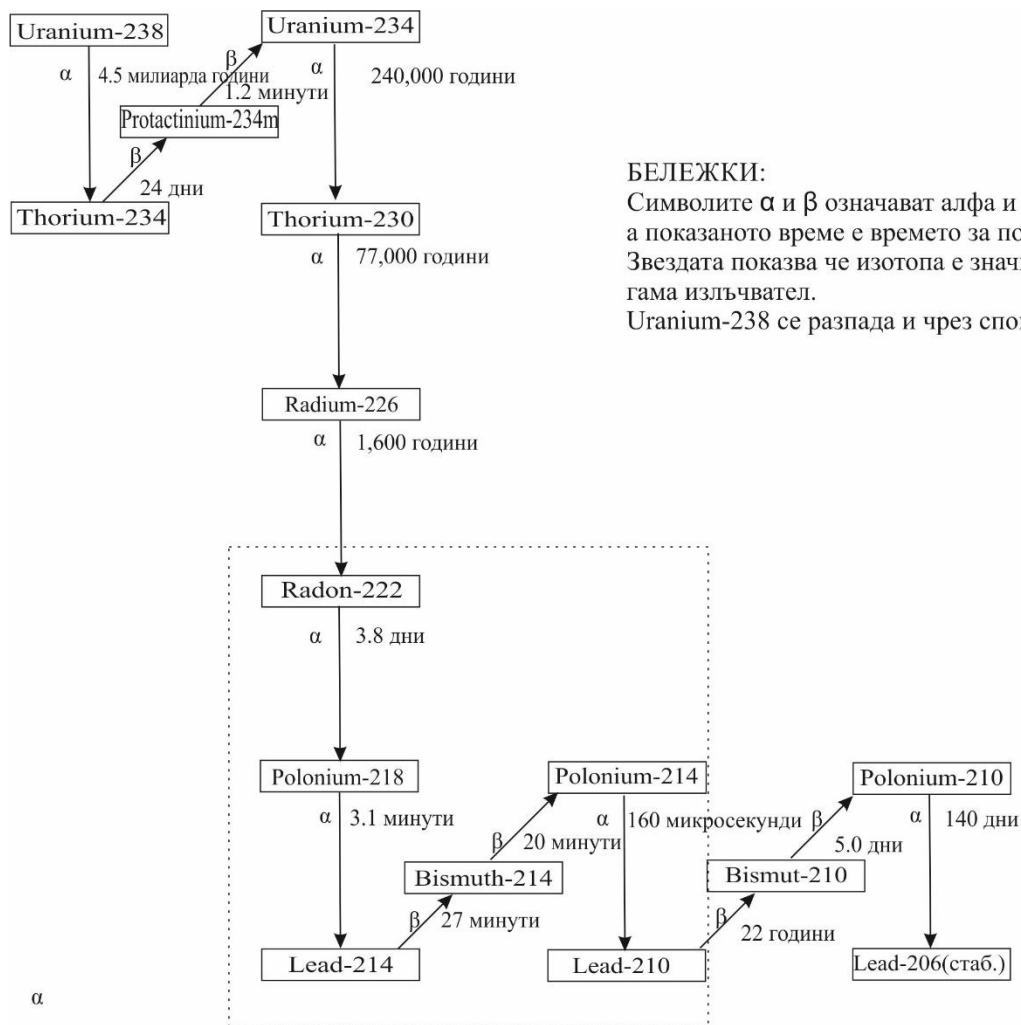
Индексирани (IF/SJR) международни издания:

1. Pressyanov D., Dimitrov D., Dimitrova I., Georgiev S., Mitev K. Novel approaches in radon and thoron dosimetry. *AIP Conf. Proc.*, 1607, (2014) 24-33.
2. Pressyanov D., Dimitrov D., Dimitrova I., Energy - efficient reconstructions and indoor radon: the impact assessed by CDs/DVDs, *J. Envir. Radioact.* 143, (2015).76-78.
3. Dimitrov .D., Pressyanov D., The CD/DVD method as a tool for the health physics service and ventilation diagnostics in underground mines., *Radiat. Prot. Dosim.* 181 (2018) 30-33.
- 4 .Pressyanov D., Dimitrov D., Dimitrova I., Passive radon monitors with part-time sensitivity to radon, *Radiation Measurements* 118 (2018) 72–76.

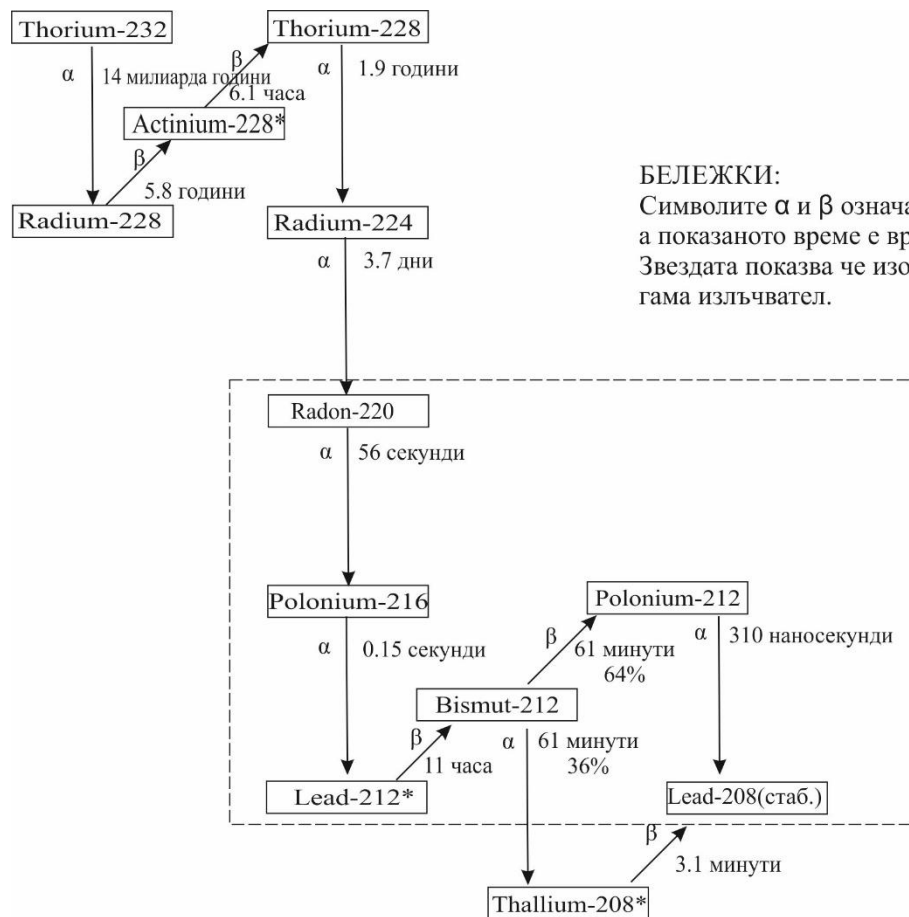
Доклади на конференции:

5. Pressyanov D., Stojanovska Z., Dimitrov D., Georgiev S., Pilot survey of indoor radon in Republic of Macedonia using retrospective method *IN: 2nd East European Radon Conference*, Nis, Serbia, (2014).
6. Pressyanov D., Dimitrov D., Using CDs/DVDs for radon and thoron monitoring in underground mines. *IN: 2nd East European Radon Conference*, Nis, Serbia, (2014).

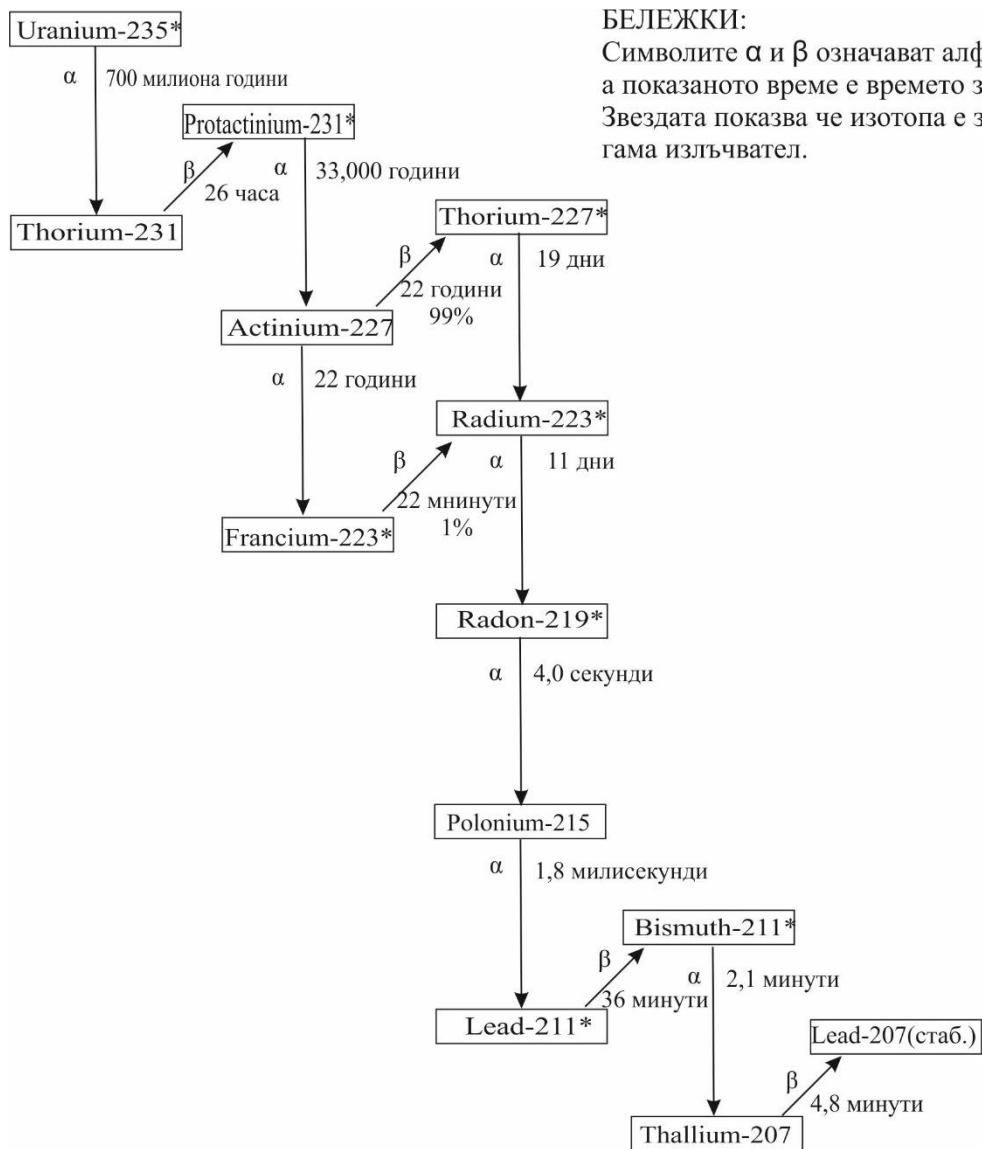
Приложение 1



Приложение 2



Приложение 3



Приложение 4. Термини и дефиниции

Величини свързани с облъчването от радон и ДПР.

Концентрация на потенциалната енергия на алфа-разпадането на дъщерните продукти на радон. PAEC-Potential Alpha Enegy Concentration-Пълната енергия на алфа частици, излъчени при разпадането на радон и ДПР до ^{210}Po в единица обем въздух [10,20].

Еквивалентна равновесна концентрация на дъщерните продукти на радон (ЕЕС). Това е такава обемна активност на ^{222}Rn , при която при пълно радиоактивно равновесие с дъщерните му продукти, концентрацията на потенциалната енергия на α - разпад ще е същата, както при конкретното разглеждано съдържание на радон и ДПР. За нея е в сила съотношението [10,20].

$$EEC = 0,105C_{A1} + 0,516C_{A2} + 0,379C_{A3} \quad (1)$$

където C_{A1} , C_{A2} и C_{A3} са съответно обемните активности на ^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi . а C_{A0} - обемната активност на ^{222}Rn .

Тогава:

$$\text{PAEC}[\text{MeV L}^{-1}]=34,7 \text{ EEC}[\text{Bq m}^{-3}] \quad [13] \quad (2)$$

Разликата между обемната активност C_{A0} на радона и еквивалентна равновесна концентрация на дъщерните му продукти (ЕЕС) се дължи на отлагането на различните фракции. Ето защо при измерванията е необходимо да бъде въведен равновесен фактор (F)

$$F = \frac{EEC}{C_{A0}}. \quad (3)$$

Еквивалентна равновесна концентрация на дъщерните продукти на радон се пресмята, като се измерва само радоновата активност, от формула (1).

$$EEC = C_{A0} \cdot F \quad (4)$$

Ако означим концентрация на потенциалната енергия на α - разпадането на дъщерните продукти на радон, при равновесие между радона и ДПР - $PAEC_{eq}$.

Тогава може да се изрази неотложената потенциалната енергия на α - разпадането на дъщерните продукти на радон с формулата:

$$PAEC = F \cdot PAEC_{eq} \quad (5)$$

Приносът на „несвързаната фракция“ (атоми на ДПР, които не са свързани към аерозолни частици) към РАЕС се дефинира с :

$$f_p = \frac{PAEC_{unatt}}{PAEC}, \quad (6)$$

където $PAEC_{unatt}$ е потенциалната енергия на несвързаната фракция на ДПР. Обикновено f_p варира от 0.01 до 0.1 [13].

Несвързаната фракция формира по - висока доза заради по бързото си отлагане предимно в горните части на дихателната система. Свързаната фракция се отлага в алвеолите, където поради разгърнатата площ дозата е по-ниска [13].

Няма общоприет единен модел за оценка на ефективната доза (E) след облъчване получено от ДПР. Качествено, зависимостта може да бъде представена по следния начин:

$$E \propto (a + bf_p)FI_V, \quad (7)$$

където a и b са константи , а I_V е интегрираната по време обемна активност на ^{222}Rn във въздуха. F и f_p са в известен смисъл обратно пропорционални. Следователно

еквивалентната доза е пропорционална на обемната активност на ^{222}Rn в широк кръг от външни условия [16,17].

Концентрацията на радон и неговите дъщерни продукти в мините се изразява в WL. Един WL съответства на $1.3 \times 10^5 \text{ MeV} \cdot \text{L}^{-1}$. Изразена в СИ, тя е $1 \text{ WL} = 0.0208 \text{ mJ} \cdot \text{m}^{-3}$.

Връзката между равновесната концентрация и PAEC(WL) се дава с формулата:

$$\text{PAEC(WL)} = \text{PAEC (MeV L}^{-1}) / 1.3 \times 10^5 = 2.67 \times 10^{-4} \text{ EEC(Bq m}^{-3}) \text{ [18].} \quad (8)$$

Традиционната експозиция на миньорите се изразява в WLM (Working Level Month). Изчислява се за 170 часа тъй като работната седмица на миньорите е 40 часова. Тогава 1 WLM съответства на експозиция в PAEC на $1.3 \times 10^5 \text{ (MeV L}^{-1})$ за 170 часа. Изразена в СИ, тя е

$$1 \text{ WLM} = 6,37 \cdot 10^5 \text{ Bq m}^{-3} \cdot \text{h} = 12.75 \text{ J s m}^{-3}. \quad (9)$$