



Софийски университет "Св. Климент Охридски"

ФИЗИЧЕСКИ ФАКУЛТЕТ

Специалност: "Физика на атомното ядро и
елементарните частици"

ДИПЛОМНА РАБОТА

На Полина Асенова Търпоманова Фак. N 160267

За получаване на образователна степен магистър

ТЕМА:

Калибриране на течно-сцинтилационен спектрометър Rack Beta Spectral 1219 за измерване на активността на ^{222}Rn , абсорбиран в поликарбонатни гранули

гр. София
Март 2014

Ръководител:
доц. д-р Красимир Митев

СЪДЪРЖАНИЕ

1. УВОД.....	СТР.3
2. ТЕОРЕТИЧНА ЧАСТ.....	СТР.4
2.1 ФИЗИЧЕСКИ ХАРАКТЕРИСТИКИ НА РАДОН-222. РАДИОАКТИВНО РАВНОВЕСИЕ НА ^{222}Rn И ДЪЩЕРНИТЕ МУ ПРОДУКТИ НА РАЗПАДАНЕ.....	СТР.4
2.2 МЕТОДИ ЗА ИЗМЕРВАНЕ НА РАДОН-222.....	СТР.6
2.3 ДИФУЗИЯ НА РАДОН В ПОЛИКАРБОНАТИ. ИЗПОЛЗВАНЕ НА ПОЛИКАРБОНАТНИ ОБРАЗЦИ ЗА ПРОБОВЗЕМАНЕ НА РАДОН ОТ ОКОЛНАТА СРЕДА.....	СТР.9
2.4 РАДИОАКТИВНО РАВНОВЕСИЕ МЕЖДУ ^{222}Rn И ПРОДУКТИТЕ МУ НА РАЗПАДАНЕ.....	СТР.13
2.5 ЕКСПЕРИМЕНТАЛНА СИСТЕМА ОТ ЗАТВОРЕН ТИП ЗА ОБЛЪЧВАНЕ НА ПОЛИКАРБОНАТНИ ГРАНУЛИ.....	СТР.16
2.6 ПРИНЦИП НА ДЕЙСТВИЕ НА ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОНЕН СПЕКТРОМЕТЪР RACK-BETA SPECTRAL 1219.....	СТР.17
3. ЕКСПЕРИМЕНТАЛНА ЧАСТ.....	СТР.22
3.1 ПОДГОТОВКА НА ПРОБИТЕ.....	СТР.22
3.2 ЕКСПЕРИМЕНТ ЗА КАЛИБРИРАНЕ НА ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОНЕН СПЕКТРОМЕТЪР RACK- BETA SPECTRAL 1219.....	СТР.24
3.2.1 ОЦЕНКА НА АКТИВНОСТТА НА ^{222}Rn В ПОЛИКАРБОНАТНИ ГРАНУЛИ ЧРЕЗ ИЗМЕРВАНЕ НА ДЕТЕКТОР ОТ СВРЪХЧИСТ ГЕРМАНИЙ.....	СТР.25
3.2.2 ИЗМЕРВАНЕ НА ГРАНУЛИТЕ, СМЕСЕНИ С ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОНЕН КОКТЕЙЛ В РЕЖИМ НА ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННО БРОЕНЕ НА RACK-BETA SPECTRAL 1219.....	СТР.25
3.2.3 ОЦЕНКА НА НЕОПРЕДЕЛЕНОСТИТЕ.....	СТР.27
3.3 ЕКСПЕРИМЕНТ ЗА ПРОСЛЕДЯВАНЕ ОТКЛИКА НА СИСТЕМАТА В РЕЖИМ НА ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННО БРОЕНЕ В ЗАВИСИМОСТ ОТ КОЛИЧЕСТВОТО ПОЛИКАРБОНАТНИ ГРАНУЛИ.....	СТР.27
3.4 ЕКСПЕРИМЕНТ ЗА ИЗСЛЕДВАНЕ НА ПРОЗРАЧНОСТТА НА ПОЛИКАРБОНАТНИ ГРАНУЛИ, СМЕСЕНИ С ТЕЧЕН СЦИНТИЛАТОР.....	СТР.32
4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ.....	СТР.36

1. УВОД

До 1970г се е считало, че радиоактивният благороден газ ^{222}Rn и неговите продукти на разпадане представляват радиационен риск за здравето само за работещите в мините и урано-добивната промишленост [1]. Днес е известно, че ^{222}Rn се среща в сгради, в райони с повишени нива на радон в почвен газ и в сгради, построени с материали, съдържащи високи нива на ^{226}Ra . Според оценка на Научния комитет на обединените нации за ефектите от атомната радиация (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR)) радонът в околната среда е отговорен за 50% от радиационното облъчване на човека от естествени източници [2]. Този факт, заедно с установяването на ^{222}Rn като причинител номер едно на рак на белите дробове след тютюнопушенето [3], са основата върху която се създават национални програми за ограничаване на въздействието на радон в сгради и предпазване на работещите или живеещите в тях от въздействието му. Допустимите нива на благородния газ са регламентирани в законодателството на много страни по света.

Методите за измерване на ^{222}Rn намират широко приложение при предприемане на мерки за понижаване нивата на ^{222}Rn в дадена сграда или дом или за неговото отстраняване. Методите биват дискретни (краткосрочни измервания, които измерват концентрациите на радон в рамките на няколко часа до няколко дни), кумулативни (интегрални измервания за период от време от 3 месеца до 1 година) и ретроспективни (кумулятивни методи, които дават оценка за концентрацията на радон назад във времето). През последните години активно се развиват методите за измерване на радон посредством абсорбция в поликарбонати. Поликарбонатният метод позволява прецизни ретроспективни измервания на концентрациите на радон в жилища, така също и проспективни кумулативни измервания на радон в жилища, околна среда и във води [4],[5]. Методът е подходящ за широкомащабни, масови кампании за оценка на нивата на радон в жилища и съставяне на радонови карти [6].

Цел на настоящата дипломна работа е да се калибрира течно-сцинтилационния спектрометър Rack-Beta Spectral 1219 за измерване на активността на ^{222}Rn , абсорбиран в поликарбонатни гранули. Настоящата дипломна работа е свързана с изследване на приложението на течно-сцинтилационния анализ в поликарбонатния метод.

Проведени са експерименти за изследване на прозрачността на поликарбонатните гранули за светлината, излъчена от течно-сцинтилационния коктейл. Изследвана е зависимостта на ефективността на течно-сцинтилационната система от количеството на поликарбонатните гранули в пробата. Проведени са методични експерименти, в които са изследвани възможностите на течно-сцинтилационните измервания на радон, абсорбиран в поликарбонатни гранули.

2. ТЕОРЕТИЧНА ЧАСТ

2.1 ФИЗИЧЕСКИ ХАРАКТЕРИСТИКИ НА РАДОН-222. РАДИОАКТИВНО РАВНОВЕСИЕ НА ^{222}Rn И ДЪЩЕРНИТЕ МУ ПРОДУКТИ НА РАЗПАДАНЕ

Понастоящем се счита, че 50% от облъчването на населението на Земята от естествени радиоактивни източници се дължи на радиоактивния благороден газ ^{222}Rn [3]. Той се образува при алфа-разпадането на ядрата на ^{226}Ra , който е елемент на уран-радиевото семейство с родоначалник ^{238}U . Периодът на полуразпадане на ^{222}Rn е $T_{1/2} = 3,8232$ дни. При радиоактивното си разпадане той образува верига от дъщерни краткоживущи радиоактивни продукти в твърдо агрегатно състояние, а именно ^{218}Po , ^{214}Po , ^{214}Bi и ^{214}Pb (с периоди на полуразпадане под 30 минути). На тях се дължи голяма част от вътрешното облъчване на човек, тъй като се прилепват към съществуващите аерозоли във въздуха и попадат при вдишване в дихателната система. По данни на СЗО [7], по-голяма част от получената доза върху епителната тъкан на белите дробове е от дъщерните продукти на разпад, а не от самия ^{222}Rn , тъй като значителната част от него след вдишване, бива издишана [8]. При случай на инхалация най-големи дози получават белите дробове и въздухоносната част (нос, гръклян (ларинкс), гълтач(фаринкс)). Проучванията за оценка на концентрациите на ^{222}Rn в домове, обществени сгради и т.н, се основават на измерването на ^{222}Rn .

През 20 век учените изследват детайлно приноса на ^{222}Rn в развитието на болестта рак на белите дробове. Днес вече е установено, че ^{222}Rn е вторият по значение причинител на белодробен рак след тютюнопушенето. За хора, които никога не са пушили, той е водещ причинител [3].

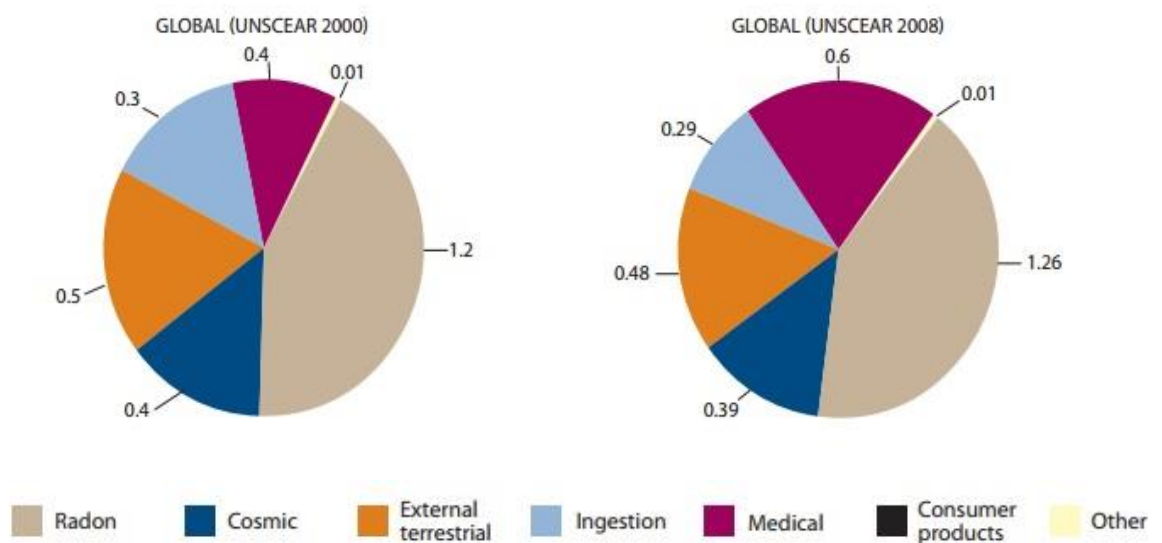
Идентифицирането на източниците на ^{222}Rn и механизмите за неговата миграция се развиват интензивно в периода 1950-1980г. Първоначално е установено, че основният риск от радонът, съдържащ се в питейната вода, е от еманирането му във въздушната среда. След това се установява отделянето на ^{222}Rn от строителни материали, съдържащи стипца и шистова скала с повишена концентрация на ^{226}Ra . В крайна сметка след 1978г почвеният газ е определен като най-важният източник на ^{222}Rn в затворени помещения [3].

В последното десетилетие учените достигат до идеята, че трябва да се проведат масови изследвания, с които да обобщят данните за риска от облъчването с радон в различни държави. В проучванията се взема предвид концентрацията на радон, навигите за тютюнопушене на изследваните индивиди и други фактори, като всички данни се събират и обработват по единен начин за всяко изследване [3]. Резултатите от 3-те систематизирани интернационални проучвания, включващи 13 европейски изследвания [9], седем северно-американски изследвания [10] и две китайски изследвания [11] сочат че съществува безпрагова зависимост за развитие на белодробен рак и линейност на кривата доза-ефект. Общата оценка от трите масови изследвания свидетелства за повишен риск за развиване на белодробен рак от 10% с повишаване концентрацията на ^{222}Rn за всеки 100Bq/m^3 .

Според проучване на СЗО частта от всички случаи на рак на белите дробове, свързани с ^{222}Rn е от 3% до 14 % в зависимост от средната концентрация на радон в

дадената държава и използваните методи за пресмятане. Счита се, че случаите на белодробен рак, индуцирани от радон-222, са възникнали вследствие на облъчване с ниски до средни активности на радиоактивния газ, каквито се срещат в домовете на хората. Въз основа на последните научни данни СЗО препоръчва референтно ниво от 100 Bq/m^3 , за да се намали риска от намиращия се в домовете радон. На Фигура 1 е показано разпределението на облъчването от различни източници на глобално ниво. Вижда се, че най-голяма част от облъчването се дължи на ^{222}Rn .

Следвайки препоръките на СЗО и международния опит, през 2013 година Министерството на Здравеопазването на България приема „Национална програма за намаляване въздействието на радон в сгради върху здравето на българското население” за периода 2013-2017г. В нея се предвижда да се хармонизира националното законодателство с новите европейски и международни изисквания, да се определят изисквания към методите и средствата за измерване на радон, да се направи национално проучване за нивата на радон в сгради, за да се изготви радонова карта, въз основа на създадена национална база данни от измервания на радон в сгради, да се информира широката общественост и други [12].



Фигура 1. Оценка на UNSCEAR за средната доза облъчване, дължаща се на различни източници на глобално ниво. „Други“ се отнася до облъчването от вторични продукти от ядрени тестове, аварията в Чернобил и емисии от Атомните електроцентрали [2].

2.2 МЕТОДИ ЗА ИЗМЕРВАНЕ НА РАДОН

Разграничават се дискретни, кумулативни и ретроспективни методи за определяне активността на ^{222}Rn .

Дискретните методи дават информация за обемната активност на радона в дадения момент в даденото помещение. Тъй като концентрацията на радона варира в рамките на едно денонощие или зависи от други фактори (като честота на проветряване, наличие на климатици и др.), то СЗО не препоръчва дискретните методи да се използват в кампании за оценка на облъчването от радон [3]. Тези методи намират приложение за лабораторни цели.

Ще обърнем внимание на радоновия монитор RAD7, тъй като той е използван в настоящата дипломна работа за дискретни измервания с цел определяне на обемната активност на радон във въздух. RAD7 е производство на DurrIDGE Co. Inc., USA и е калибриран (януари 2012) чрез сравнение с вторичен стандарт, проследим до стандартите на US Environmental Protection Agency и на US Department of Energy. Пробоотбирането от въздуха става чрез фин всмукателен филтър, който не пропуска дъщерните продукти на радона в обема на детектора за анализ. Вътрешността на камерата, с обем 0.7л, с формата на полукълбо, е покрита с проводников материал. В сърцевината ѝ се намира планарен силициев детектор за алфа частици. Посредством високо-волтова схема, вътрешният проводник бива зареден до напрежение $U=2000\sim 2500\text{V}$, в сравнение с детектора, създавайки електрично поле в целия обем на камерата. Полето придвижва положително заредените заряди върху детектора [13]. В обема на камерата ^{222}Rn се разпада, създавайки алфа-излъчващи дъщерни продукти, в частност изотопите на ^{218}Po . Тези дъщерни продукти по правило представляват заредени атоми, и с помощта на електричното поле се събират на повърхността на полупроводниковия детектор. Различните продукти на разпадане излъчват алфа-частици с различни енергии и следователно създават различни по сила сигнали в детектора. RAD7 усилва, филтрира и сортира сигналите според тяхната сила. Детекторът отчита излъчването от разпадните продукти, но измерва само концентрацията на ^{222}Rn . Спектърът на детектора показва дъщерните продукти на разпад на ^{222}Rn , а не самия радон [13].

Друг дискретен метод е метода за измерване концентрацията на краткоживеещите дъщерни продукти на ^{222}Rn във въздух чрез радиометър РВ-4. За определяне на активността на ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po се правят измервания на α -активността, посредством филтърен метод, в който даден обем въздух се филтрира и след това се измерва активността на задържаните върху него аерозоли. Използва се методът на трите интервала, като се правят три последователни измервания на α -активността на филтъра в три различни времеви интервала [14].

Поради денонощните, сезонните и годишни вариации на ^{222}Rn , представителни измервания за оценка на риска от него са кумулативните и ретроспективните измервания. Това са интегрални измервания за по-продължителен период от време, като СЗО препоръчва те да се провеждат за период от 3 месеца до една година [3].

Един от най-широко използваните методи за кумулативни измервания в жилищни сгради е метода на дифузионните камери с твърдотелни детектори на следи [3]. Дифузионната камера има формата на цилиндър, на дъното, на който е прикрепен твърдотелен детектор. Капакът на дифузионната камера (или дифузионната бариера) не позволява на дъщерните продукти на радона да навлязат в нейния обем. По този начин само ^{222}Rn дифундира в обема ѝ. Алфа частиците, образувани при разпадането на радона и краткоживеещите му продукти формират трекове в детектора. Трековете се обработват химически, за да се увеличи техният размер. Преброяването на следите става посредством ръчно броене (или автоматично) с микроскоп. След което по плътността на трековете се оценява концентрацията на ^{222}Rn [15]. Друг метод за кумулативни измервания е метода на електретните йонни камери [3]. Обзор на методите за кумулативни измервания е обстойно направен в литературата [15].

Друг вид кумулативни измервания са ретроспективните измервания, които дават информация за активността на радона назад във времето. Латентният период за развиване на белодробен рак е от 5 до няколко десетки години и за да се установи връзката между облъчването и заболяването от болестта е необходимо да се направят оценки за концентрациите на радон назад във времето, на които дадения човек е бил изложен. Едни от най-популярните методи за ретроспективни измервания са метода на имплантираното в стъкло ^{210}Pb , метод на обемните уловки, метод на лещите за очила и CD/DVD метода. При тях се определя интегрираната за времето на облъчване обемна активност на ^{222}Rn по така наречените предмети-свидетели, които човек взема при преместване в друго жилище или носи със себе си (рамки на картини, мебели, лещи на очила, компакт-дискове).

Методът на имплантираното в стъкло ^{210}Pb се състои в определяне на повърхностната активност на олово-210 в стъклен образец от дадено жилище, което се изследва. Методът не определя директно активността на ^{222}Rn във въздух, а активността на дългоживуещите продукти на разпад (ДПР) на радона, отлагали се по образца. Чрез моделиране на процеса на отлагане на ДПР и имплантирането им в стъклото се прави оценка на процента имплантирани атоми ^{210}Pb на един атом ^{222}Rn във въздух. Предположението, което се допуска в метода, че интегрираната обемна активност на ^{222}Rn във въздух е била постоянна по време на облъчването е потенциален източник на грешка [16].

Методът на обемните уловки се основава на способността на ^{222}Rn да дифундира в порести материали (обикновено се използва пълнеж на матраци или мебели). Радонът търпи разпадане вътре в материала, което води до натрупването на ДПР в порите на материала. По този начин активността на радона не зависи от краткоживуещите му продукти на разпадане (КПР). В метода, за разлика от метода на имплантираното в стъкло ^{210}Pb , получената обемна активност на ^{210}Pb се свързва директно с активността на ^{222}Rn във въздуха [17].

В метода на лещите за очила, α -частиците, които се излъчват от ^{222}Rn и КПР (^{218}Po и ^{214}Po) формират трекове в материала на лещите за очила, който има свойството на твърдотелен детектор на следи. Плътността на следите е пропорционална на интегрираната по времето обемна активност на ^{222}Rn , която силно се влияе от равновесието на радона с КПР. За да се намали този ефект се използва повърхността на лещата от вътрешната част на лицето. Тъй като КПР се отлагат по повърхности (очилата

и лицето) плътността на следите зависи и от навиците на носене и почистване на очилата на дадения човек. Ето защо методът е считан по-скоро за спомагателен [15].

Компакт-дискният метод се основава на способността на поликарбонатния материал (от който се произвеждат дисковете), синтезиран от бисфенол-А да абсорбира РБГ и свойството на този материал на твърдотелен детектор на следи [18],[19]. Компакт-дискният метод не е базиран на измерване на ДПР на радона. Попадайки в обема на диска, ^{222}Rn се разпада. Алфа частиците излъчени от радона и неговите КПР - ^{218}Po и ^{214}Po - формират трекове в детектора. Проявяват се трековете, формирани в поликарбонатния материал на диска на дълбочина $d > 79\mu\text{m}$, за да се осигури проявяване на следи, които се дължат само на радон и КПР. Плътността на проявените трекове е пропорционална на обемната активност на ^{222}Rn във въздуха, интегрирана по времето на облъчване [16]. Експериментите сочат, че компакт-дискният метод осигурява точност по-добра от 30% [17]. Това го прави най-точния понастоящем ретроспективен метод за измерване на радон в света. Ретроспективните методи са детайлно разгледани в литературата [16].

2.3 ДИФУЗИЯ НА РАДОН В ПОЛИКАРБОНАТИ. ИЗПОЛЗВАНЕ НА ПОЛИКАРБОНАТНИ ОБРАЗЦИ ЗА ПРОБОВЗЕМАНЕ НА РАДОН-222 ОТ ОКОЛНАТА СРЕДА

В последното десетилетие се развива клас от методи, които използват абсорбцията на радиоактивните благородни газове в поликарбонатни образци като метод за тяхното пробовземане от околната среда. Чрез тези експерименти е показана и количествено определена високата абсорбционна способност на поликарбонатите към ^{222}Rn и други радиоактивни благородни газове (РБГ) [20],[21],[15],[16].

Поставени в среда, съдържаща ^{222}Rn , поликарбонатните гранули абсорбират радоновите атоми от средата в своя обем. Транспортът на атомите на ^{222}Rn в поликарбоната се осъществява чрез дифузия. Процесите на сорбция и десорбция в поликарбонатните образци и уравнението на дифузия са детайлно изследвани в литературата [22],[20]. Уравнението на дифузия, в което е отчетено разпадането на ^{222}Rn , в случая, когато се измерват поликарбонатни образци има вида:

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

Където c е атомната концентрация (атоми на единица обем) на съответния радиоактивен благороден газ (в нашия случай- ^{222}Rn) в обема на гранулите, D - коефициент на дифузия, λ_{222} – константата на разпад на ^{222}Rn . Решението на уравнението зависи от режима на облъчване на поликарбонатните образци, от дебелината и формата на поликарбоната /пластини, гранули/. В настоящата дипломна работа е използван режим на облъчване на експоненциално намаляваща активност на ^{222}Rn , а поликарбонатните образци са гранули. Гранулите с форма на елиптичен цилиндър с височина $h=2.65$ mm и полуоси $a=1.78$ mm и $b=1.17$ mm са апроксимирани с кръгообразен цилиндър с радиус $R= 1,49$ mm и $H=2,65$ mm, като се взима предвид, че периметърът на кръг с радиус 1,49 mm е същия както на дадената елипса [20]. При тези условия решението на уравнението на дифузия за поликарбонатни гранули при време на сорбция t_s и последващо време на десорбция t_d е :

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

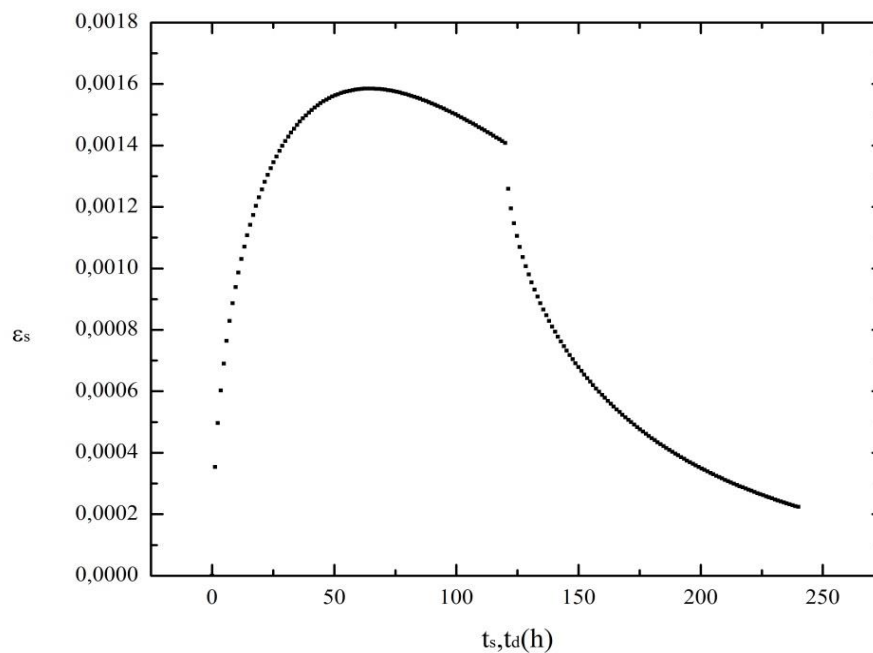
Където $\lambda_{m,j} = \lambda \left(1 + \left(\frac{v_m L_D}{R} \right)^2 + \left(\frac{j \pi L_D}{H} \right)^2 \right)$, $j = 2k + 1$, а v_m е m -тия корен на функцията на Бесел от нулев ред. Коефициентът K се нарича коефициент на разтворимост и се дефинира като отношението между обемната активност на ^{222}Rn в поликарбонатната повърхност и обемната активност на ^{222}Rn , в нашия случай, в даден обем въздух. Дава се със следната формула- $K = \frac{C_{PC(x=0+)}}{A_{V,env}}$, където $C_{PC(x=0+)}$ е обемната активност на ^{222}Rn на повърхността на поликарбонатните гранули, а $A_{V,env}$ е обемната активност на ^{222}Rn в околната среда, в която е поставен поликарбонатния образец.

Дължината на дифузия $L_D = \sqrt{\frac{D}{\lambda}}$ се дефинира като средното разстояние, което радоновите атоми изминават в поликарбоната, преди да претърпят разпад. Както се вижда от формулата L_D зависи от коефициента на дифузия D на ^{222}Rn в поликарбоната и от константата на полуразпад λ на ^{222}Rn .

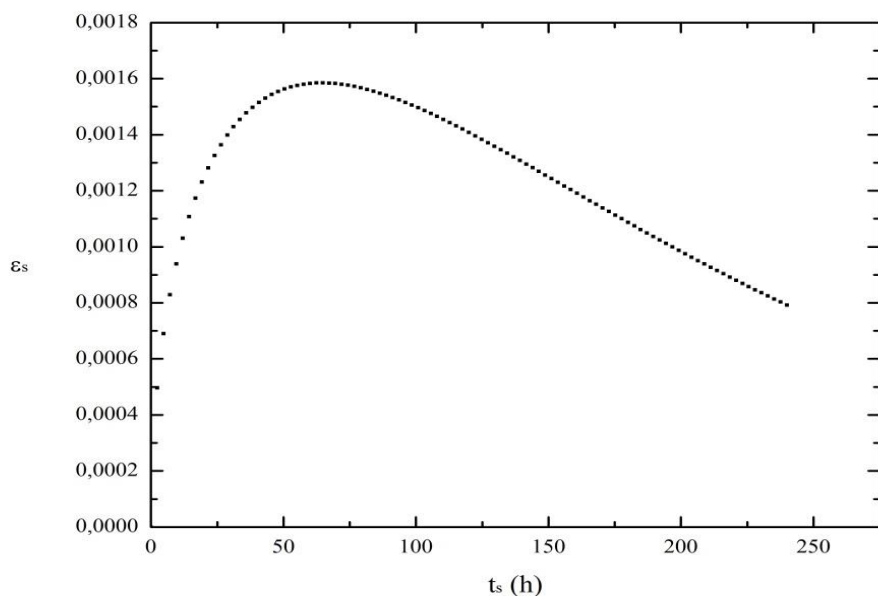
На базата на теоретичния модел, който аналитично описва процесите на сорбция и десорбция е разработен числен код, който пресмята абсорбираната в поликарбоната активност и разпределението ѝ в него [23]. Компютърният код позволява да се зададат условията на облъчване: избор на радиоактивния благороден газ, който ще се измерва, избор на околната среда (въздух или вода), концентрация на дадения РБГ в околната среда, режим на облъчване, размери на гранулите и други. При зададените условия, кодът дава възможност да се пресметне ефективността на пробовземане ε_s . Ефективността на пробовземане:

$$\varepsilon_s = \frac{A_{PC}}{A_{env}} \quad (3)$$

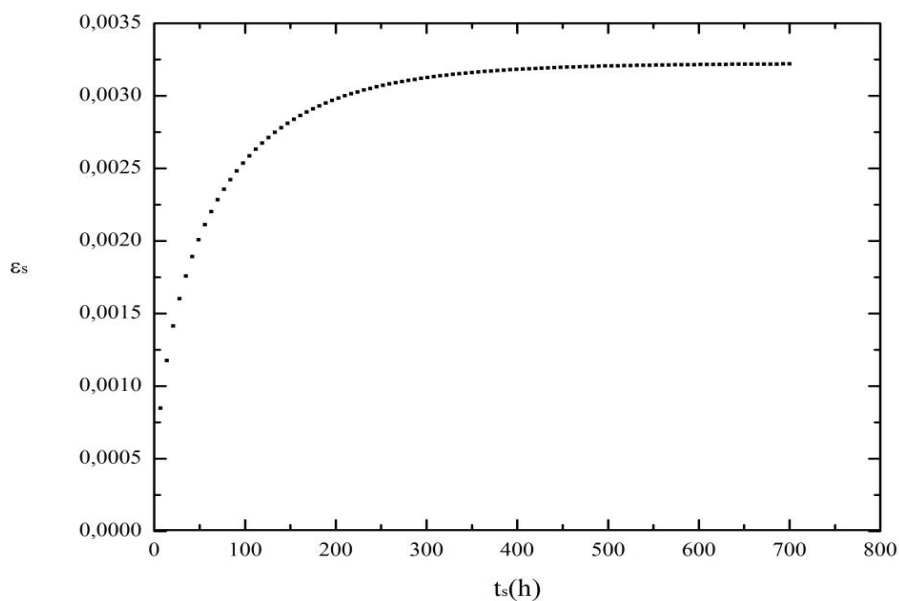
определя активността на ^{222}Rn в поликарбоната A_{PC} , в сравнение с обемната му активност в околната среда A_{env} , съдържаща се в обем V , равен на този на поликарбонатния образец, като $A_{env} = V \cdot A_{env,V}$. Ефективността на пробовземане, пресметната с кода при Режим на облъчване на експоненциално намаляваща външна активност е показана на Фигура 2 и Фигура 3. Режим с постоянна активност е показан на Фигура 4 и Фигура 5.



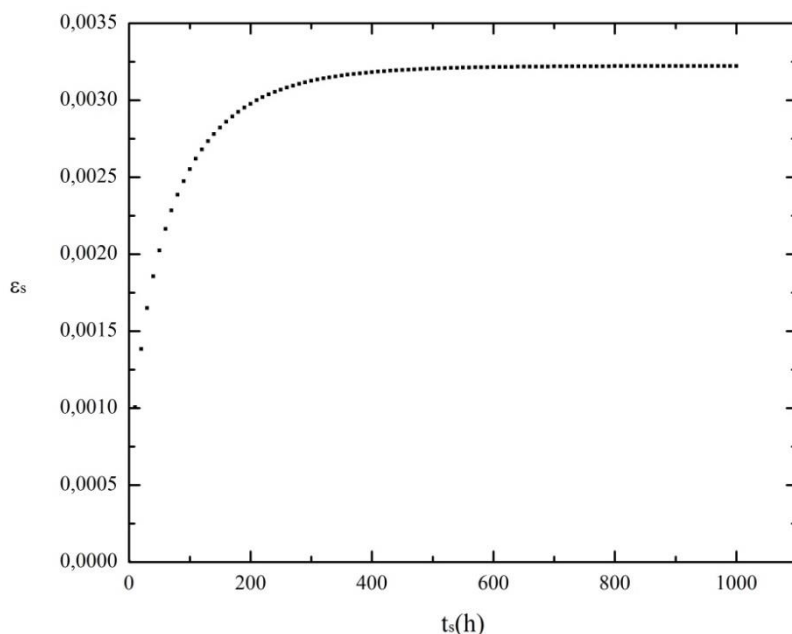
Фигура 2. Зависимостта на ε_s от време на сорбция и последващо време на десорбция ($t_s = 120\text{h}$, $t_d = 120\text{h}$) в режим на експоненциално намаляваща външна активност. В кода е зададена външна активност $A=1000\text{Bq/m}^3$ за 15гр гранули, при стойности на $k=26.2$ и $L_D=52.13\mu\text{m}$, пресметнати за $T=20^\circ\text{C}$.



Фигура 3. Зависимостта на ϵ_s от времето на сорбция ($t_s=240h$) в режим на експоненциално намаляваща външна активност. В кода е зададена външна активност $A=1000Bq/m^3$ за 15гр гранули, при стойности на $k=26.2$ и $L_D=52.13\mu m$, пресметнати за $T=20^\circ C$.



Фигура 4. Зависимостта на ϵ_s от времето на сорбция $t_s=700h$ в режим на постоянна външна активност. В кода е зададена външна активност $A=1000Bq/m^3$ за 15гр гранули, при стойности на $k=26.2$ и $L_D=52.13\mu m$, пресметнати за $T=20^\circ C$.



Фигура 5. Зависимостта на ε_s от времето на сорбция $t_s = 1000\text{h}$ в режим на постоянна външна активност. В кода е зададена външна активност $A=1000\text{Bq/m}^3$ за 15гр гранули, при стойности на $k=26.2$ и $L_D=52.13\mu\text{m}$, пресметнати за $T=20^\circ\text{C}$.

В рамките на дипломната работа, при калибриране на спектрометъра Rack-Beta Spectral, е определена ефективността на течно-сцинтилационно броене ε_c . Тя се дефинира с:

$$\varepsilon_c = \frac{n_0}{A_{PC}} \quad (4)$$

където $n_0 = n_{meas} - n_{bckg}$

Така дефинираната ефективност на течно-сцинтилационно броене ε_c дава вероятността за регистрация на една частица (α - или β - частица). Във формулата n_0 е чистата скорост на броене (т.е скоростта на броене, коригирана с фоновата скорост на броене) в целия спектър на спектрометъра Rack Beta- Spectral 1219 (канали от 1 – 1024), A_{PC} - активността на радона, абсорбирана в поликарбонатните гранули.

Експерименталното определяне на ε_s и ε_c , позволява да се направи оценка за обемната активност на РБГ в околната среда [24], като тя може да бъде определена от следната формула:

$$A_{V,env} = \frac{n_0}{V \cdot \varepsilon_s \varepsilon_c} \quad (5)$$

Поради простотата на метода и неговата висока чувствителност [25], е смислено да се изследват възможностите на течно-сцинтилационният анализ на поликарбонатни гранули за мониторинг на радон в околната среда.

2.4 РАДИОАКТИВНО РАВНОВЕСИЕ МЕЖДУ ^{222}Rn И ПРОДУКТИТЕ МУ НА РАЗПАДАНЕ

При голяма част от методите за дискретни измервания активността на ^{222}Rn се оценява по активността на краткоживеещите му продукти на разпадане. При тези методи обикновено се осигуряват условия за достигане на веково радиоактивно равновесие между ^{222}Rn и дъщерните му продукти на разпадане. Да разгледаме случай, в който при радиоактивно разпадане, от матерен нуклид 1 се получава дъщерен нуклид 2. В началния момент има N_{01} ядра от матерния елемент и нито едно ядро от дъщерния радионуклид ($N_{02} = 0$). Броят на образуваните се дъщерни ядра за единица време от разпадането на матерното е $\lambda_1 N_1$, а $\lambda_2 N_2$ е броя на разпаданията на дъщерното ядро за единица време. Броят ядра на матерния нуклид се изменя според:

$$N_1 = N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (6)$$

Изменението на броят на ядрата на дъщерния нуклид N_2 се описва от :

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (7)$$

Заместваме N_1 (7) и се получава :

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (8)$$

Тогава за общото решение на уравнението като сбор от решението на хомогенното уравнение и частното решение получаваме:

$$N_2(t) = N_{02} e^{-\lambda_2 t} + N_{01} [C_1 e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t}] \quad (9)$$

В началния момент броят на дъщерните ядра е равен на нула ($N_2(0) = N_{02} = 0$) и като заместим частното решение в уравнение (7) получаваме за константата

$$C_1 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1}. \text{ Тогава:}$$

$$N_2(t) = N_{01} \left[\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t} \right] \quad (10)$$

От условието в момента $t = 0$, $N_{02} = 0$ се получава $C_2 = -\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1}$. Тогава уравнение(10) добива вида :

$$N_2(t) = N_{01} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} [e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}] \quad (11)$$

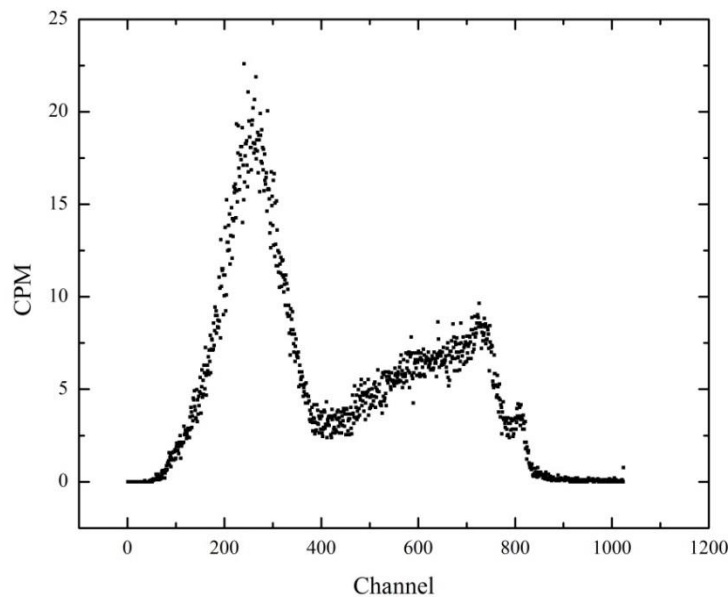
Като се има предвид, че $N_i \lambda_i = A_i$ и ако $\lambda_2 \gg \lambda_1$, т.е дъщерният нуклид е много по-краткоживеещ от матерния нуклид, тогава за активността на дъщерния продукт получаваме:

$$A_2 = A_1(0) e^{-\lambda_1 t} = A_1(t) \quad (12)$$

Състоянието, при което активностите на матерното и дъщерното ядро са равни помежду си се нарича веково радиоактивно равновесие [26],[27].

На Фиг.6 е показан спектърът получен с течно-сцинтилационен спектрометър RackBeta Spectral 1219 при измерване на ^{222}Rn , абсорбиран в поликарбонатни гранули

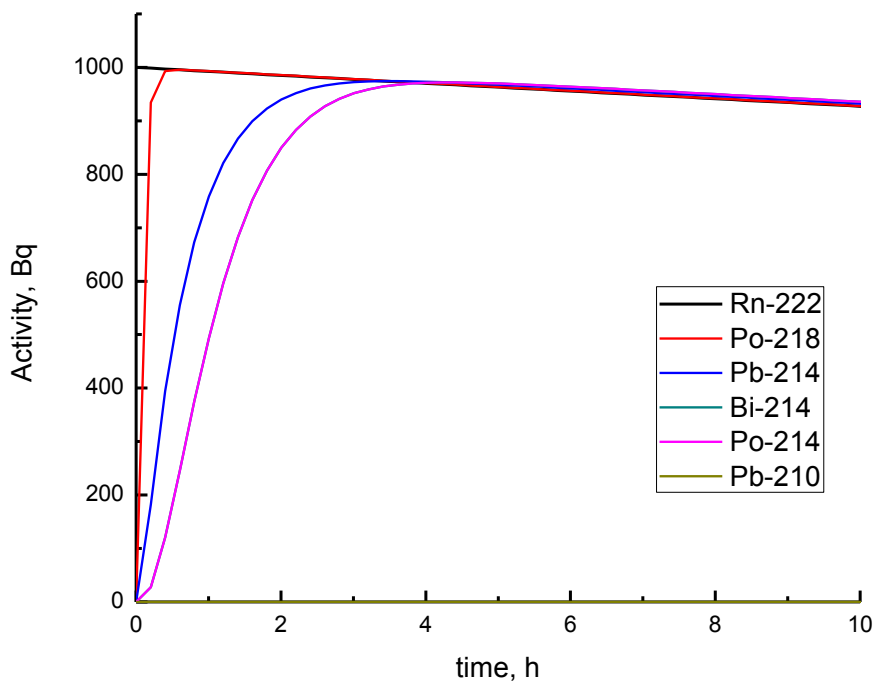
в равновесие с дъщерните му продукти. Първи на фигурата, от ляво на дясно, е пика на черенковско излъчване¹ на краткоживеещите β -разпадни продукти на ^{222}Rn - ^{214}Pb ($T_{1/2} = 26.8$ мин, $E_{\beta\text{max}} = 1\text{MeV}$) и ^{214}Bi ($T_{1/2} = 19.8$ мин, $E_{\beta\text{max}} = 3.3\text{MeV}$) в поликарбонатния материал. Метод за измерване на активността на радон чрез измерване на черенковското лъчение генерирано от бета-частиците на продуктите на разпад на радона е публикуван в [28]. Следват α -пиковите на ^{222}Rn ($E_{\alpha} = 5.5\text{MeV}$), ^{218}Po ($T_{1/2} = 3.05$ мин, $E_{\alpha} = 6\text{MeV}$) и ^{214}Po ($T_{1/2} = 164\ \mu\text{s}$, $E_{\alpha} = 7.7\text{MeV}$).



Фигура 6. Спектър на ^{222}Rn в равновесие с краткоживеещите му продукти на разпад.

От резултатите на Фиг. 7 се вижда, че при затваряне на радон в даден обем веково радиоактивно равновесие между него и дъщерните му продукти се достига след около 4 часа, при положение, че радона и дъщерните радионуклиди не напускат системата. В експериментите в настоящата дипломна работа, активността на ^{222}Rn е определяна на Rack-Beta Spectral след достигане на такова равновесие.

¹ Черенковското излъчване може да бъде детектирано от спектрометъра и без наличието на течно-сцинтилационен коктейл, като образца се поставя във вода или друга течна среда [29].

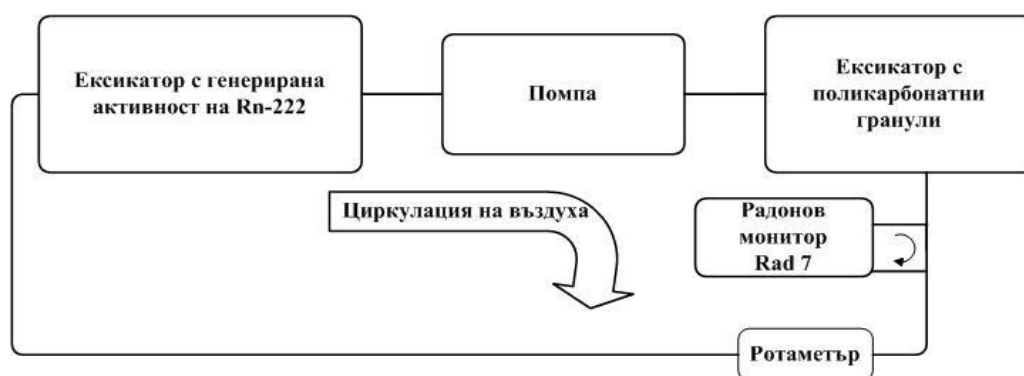


Фигура 7. Изменение на активността на ^{222}Rn и дъщерните му продукти с времето в затворена система. В началния момент активността на дъщерните продукти в системата е нула и в нея е вкаран само ^{222}Rn . Активностите на радона и дъщерните продукти са получени чрез решение на уравненията на Бейтман [30] с помощта на специализирана програма [31].

2.5 ЕКСПЕРИМЕНТАЛНА СИСТЕМА ОТ ЗАТВОРЕН ТИП ЗА ОБЛЪЧВАНЕ НА ПОЛИКАРБОНАТНИ ГРАНУЛИ

В настоящата дипломна работа са проведени три експеримента. Първият експеримент е за калибриране на течно-сцинтилационния спектрометър Rack-Beta Spectral 1219. Следващите два експеримента целят изучаване свойствата на течно-сцинтилационното броене на поликарбонатните гранули. Вторият проследява линейността на отклика на системата в режим на течно-сцинтилационно броене в зависимост от количеството поликарбонатни гранули. В третия експеримент се изучава прозрачността на пробата от поликарбонатни гранули, смесени с течно-сцинтилационен коктейл Ultima Gold.

Експерименталната система, която е използвана за облъчване на поликарбонати при известна радонова активност е от затворен тип. Схема на системата е показана на Фиг.8



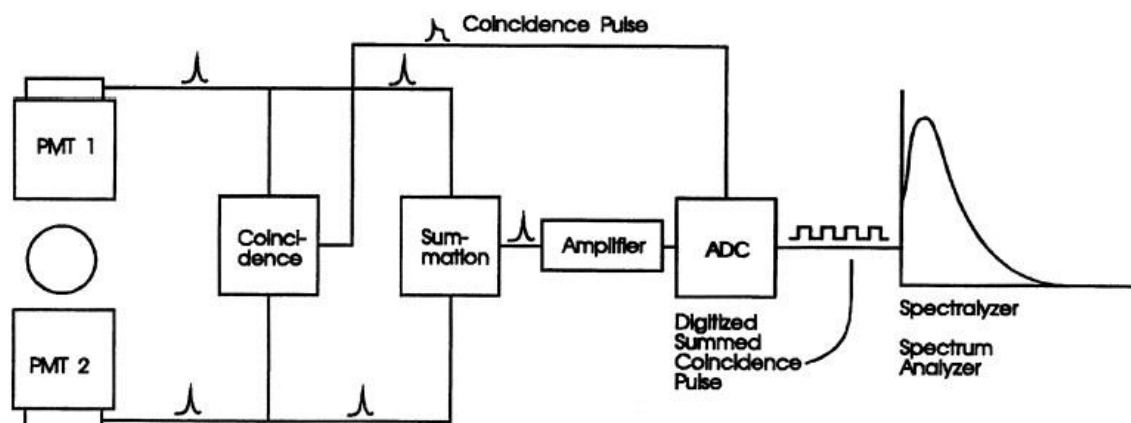
Фигура 8. Схема на експериментална система за облъчване на поликарбонати при референтни радонови концентрации.

За създаване на подходяща активност на ^{222}Rn в системата се използва сертифициран радонов генератор, в който е монтиран еманиращ източник ^{226}Ra с активност $A_{\text{cert}}=104.5 \text{ kBq} \pm 1.5\%$ (към 01.05.2006г.) и еманационна способност за ^{222}Rn $p=0.998$. В източника предварително бе генерирана активност, която е прехвърлена след това в херметичен съд. Последният е свързан с помпа, с помощта на която образувания ^{222}Rn циркулира в системата до неговото хомогенизиране. По време на облъчването на поликарбонатните гранули бяха направени последователни измервания с радоновия монитор RAD7. Активността в системата се дава със следната формула:

$$A_V = A_V(0)e^{-\lambda t} \quad (13)$$

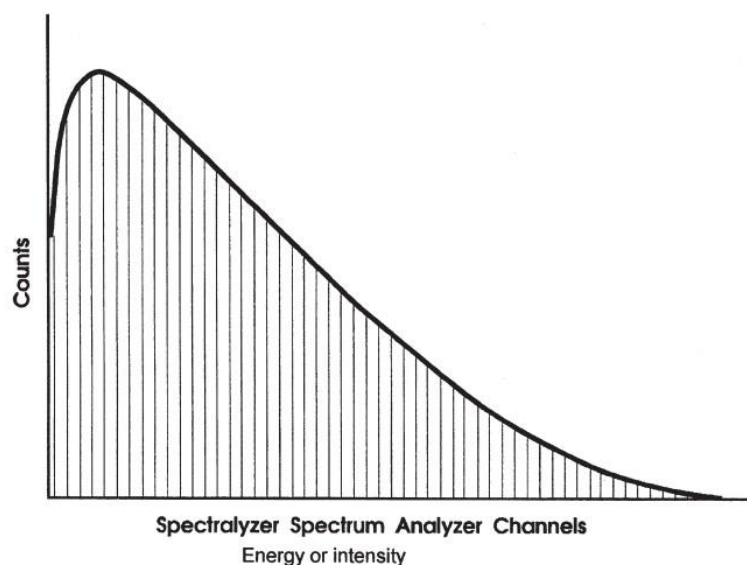
Където A_V е обемната активност в системата, намаляваща експоненциално от началната обемна активност $A_V(0)$, с константата на полуразпад λ на ^{222}Rn за време t . Горната експериментална система е тествана за херметичност по ^{222}Rn и е използвана в редица експерименти по облъчване на поликарбонатни образци [32].

2.6 ПРИНЦИП НА ДЕЙСТВИЕ НА ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОНЕН СПЕКТРОМЕТЪР RACK-BETA SPECTRAL 1219



Фигура 9. Схема на компонентите на съвременен течно-сцинтилационен спектрометър (Kessler (Кеслер), 1989) .

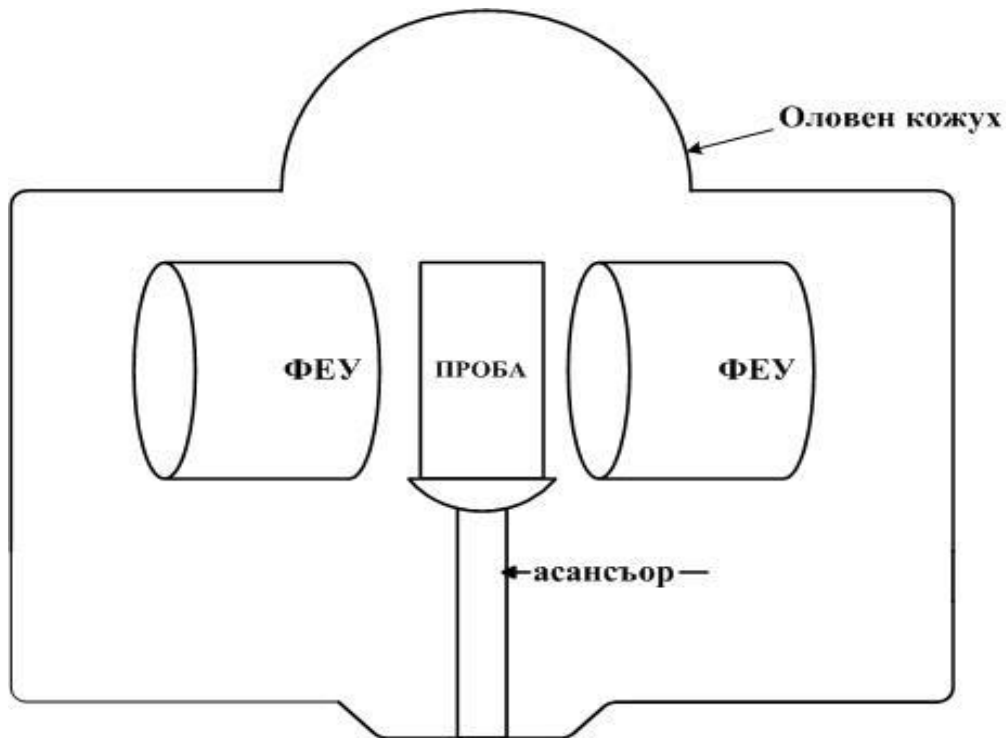
Течно-сцинтилационният спектрометър Rack-Beta Spectral 1219 се състои от три основни компоненти: детектори, брояща система и система за съвпадения. На Фигура 9 е показана схема на типичен течно-сцинтилационен спектрометър[33]. Основна част от устройството на Rack-Beta Spectral 1219 са два фотоумножителя, които са свързани в схема на съвпадение. Основна черта на течно-сцинтилационните спектрометри е, че когато светлинен сигнал от пробата попадне и в двата фотоумножителя в съвпадение, техните импулси се сумират (coincidence pulse summation). Сумиращата верига има двойно предназначение. Първото е да събира подадените два сигнала от фотоумножителите в един сигнал със сумирана интензивност. Второто предназначение е да компенсира вариациите в интензивността на светлината, които се дължат на мястото, където ядрения разпад се е осъществил в течно-сцинтилационното шише, и които биха се появили когато образци, съдържащи цвят се използват. С помощта на двата фотоумножителя и сумирания сигнал, крайната амплитуда на импулса, създадена от фотоумножителя не зависи от разположението на ядрения разпад в присъствието на цвят в течно-сцинтилационното шише. Използването на тази схема помага да се намали фона на уреда и да се оптимизира отношението сигнал-към-шум. Това прави възможно чрез такива спектрометри да се детектират някои ниско-енергийни радионуклиди (като Тритий $E_{\max} = 18.6 \text{ keV}$) и да се разграничи шумовият фон на уреда от истинските ядрени разпади. Сумираният сигнал допълнително се усилва и се изпраща към Аналого-цифровия преобразувател (АЦП). Получените сигнали се сортират на база техния размер или амплитуда на импулса.



Фигура 10. Пример за течно-сцинтилационен импулсен спектър на β -частица. Обикновено многоканалните анализатори съдържат 1024 канала, калибрани по енергии в интервала от 0-2000keV [28].

В течно-сцинтилационния спектрометър Rack-Beta Spectral 1219 се използва логаритмичен многоканален анализатор (МКА) за сортиране на импулсите. Логаритмичният многоканален анализатор показва амплитудния спектър по канали в логаритмичен мащаб. Типичен течно-сцинтилационен амплитуден спектър на бета-частици, събран в каналите на многоканалния анализатор е показан на Фигура 10 .

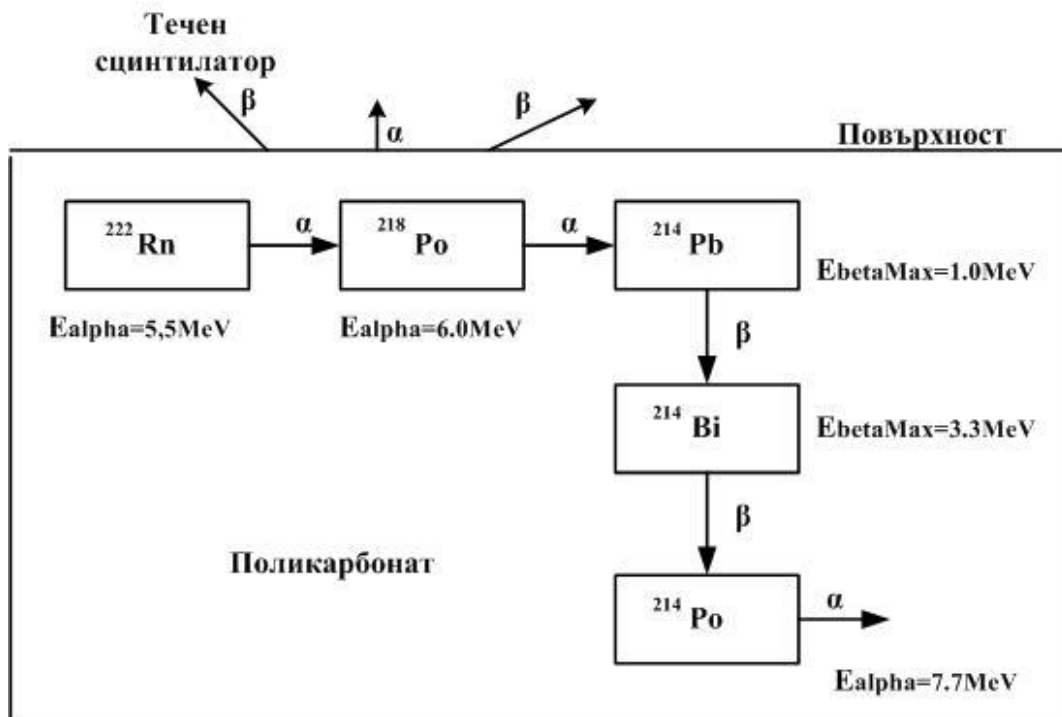
При измервания с течно-сцинтилационни спектрометри, пробите се вдигат с асансьор в пространството между фотоелектронните умножители. Системата е вместена в оловна защита, която намалява фона от гама-фотоните от околната среда (от строителните материали и от материалите, от които е направен спектрометъра). Освен това оловото редуцира „меката“ космична мюонна компонента на фона [33]. Примерна схема на Rack-Beta Spectral 1219 е показана на Фигура 11.



Фигура 11. Схема на течно-сцинтилационния спектрометър Rack-Beta Spectral 1219. Механиката на спектрометъра е поместена в оловна защита.

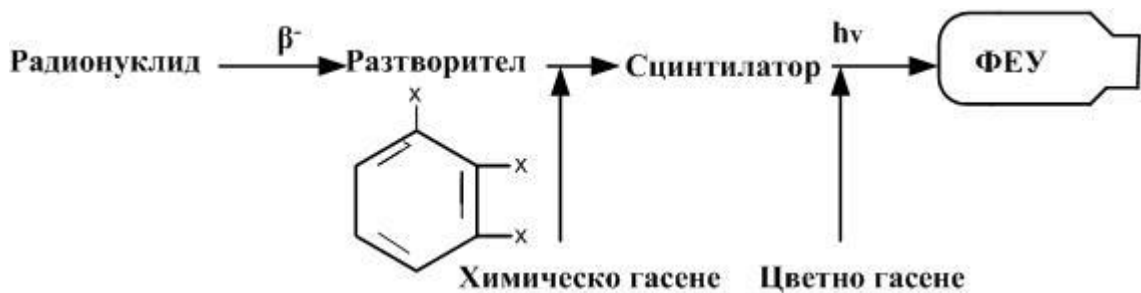
Течно-сцинтилационните коктейли са достъпни на пазара и са направени, така че да са съвместими и смесими с радиоактивни образци, разтворени или в органични разтворители или във водна среда.

При поставяне на гранули с абсорбиран радон в тях, в течен сцинтилатор α - и β -частиците, излъчени от ^{222}Rn и ДПР напускат поликарбонатните гранули и навлизат в обема на течно-сцинтилационния коктейл (Фигура 12). Поради спецификата на създаването на импулса в течно-сцинтилационния процес, импулсът от α -частица може да бъде с 35-40 ns по-дълъг от импулса, създаден от разпадането на β -частица [29]. Ефективността на броене е приблизително 100% за почти всички α -разпади, използвайки течно-сцинтилационен коктейл.



Фигура 12. Измерване на ^{222}Rn в поликарбонати чрез течносцинтилационно броене. Регистрират се алфа и бета частиците, излъчени от радона и неговите краткотривеещи продукти, които достигат течносцинтилационния коктейл.

Течно-сцинтилационния коктейл превръща първоначалната енергия на ядрения разпад в светлинни изсветвания чрез процеса показан на Фигура 12. [29]



Фигура 13. Последователността от събития в течносцинтилационния процес

На фигурата е показана последователността от събития, която лежи в основата на течносцинтилационния процес. Излъчената при даден разпад бета- или алфа - частица отдава енергията си (на фигурата енергията на бета частицата) в течносцинтилационния коктейл, съдържащ разтворител и флуор. Ароматният разтворител абсорбира по-голямата част от енергията на бета частицата. След това енергията на възбуждане на разтворителя се предава на молекулите на сцинтилатора(флуора), които след това преминават на по-ниско енергетично ниво, излъчвайки фотони видима светлина. Светлинните фотони се детектират от ФЕУ, които ги превръщат в поток от електрони и след това усилват формирания ток импулс. На Фигура 13 със стрелки са показани процесите, върху които влияят химическото и цветно гасене. Гасенето е

резултат от две причини- от присъствието на химикали във флуорния коктейл, които са смесени с образеца и от наличието на „, цветно “ вещество, което се намира в образеца. Химическото гасене настъпва когато химическо вещество, налично в пробата, абсорбира енергията на ядрения разпад в сцинтилационния процес. По този начин намаляват количеството изсветвания , намалява се и в повечето случаи интензивността на енергията на първичния ядрен разпад, видима в сцинтилационния процес [29]. Цветното гасене, резултат от наличието на цвят в пробата, абсорбира светлинните фотони в шишето за сцинтилационно броене, преди те да достигнат ФЕУ и бъдат детектирани.

За да се компенсира намалената скорост на броене, следствие двата феномена на гасене, и да се определи активността в образеца(или Разпади за минута) е необходимо да се знае ефективността на броене ϵ_c , дадена със следното уравнение [29]

$$\% \epsilon_c = \frac{CPM}{DPM} \times 100 \quad (14)$$

Където CPM (counts per minute) е скоростта на броене, определена от спектрометъра, а DPM (decay per minute) е действителната скорост на ядрен разпад на образеца. Отношението на двете скорости зависи от енергията на първичния ядрен разпад при дадена степен на гасене. Гасенето се проявява по различен начин, в зависимост от вида и енергията на източниците. При нискоенергийни β - източници (например ^3H с $E_{max} = 18,6 \text{ keV}$), колкото по-ниска е енергията на разпад, толкова по-голям е ефекта на гасене върху ефективността на броене на спектрометъра. При високо енергийни източници (например ^{14}C с $E_{max} = 156 \text{ keV}$) гасенето редуцира значително максимумите на пиковете, но има по-малък ефект върху скоростта на броене. За α -източници, гасенето на пробата не засяга значително ефективността на броене. С повишаване степента на гасене на пробата се наблюдава изместване на алфа пиковете към по-ниските амплитуди на импулса, без това да влияе значително на ефективността на детектиране. За γ -източници ефекта от гасенето на пробата е подобен на този, наблюдаван при β - източници [34].

В течно-сцинтилационните спектрометри могат да се мерят α -, β - и γ - лъчители, като в сцинтилационният процес и изсветванията, създадени от тях се наблюдават различия. Ефективността на броене също е различна за различните лъчения. Обикновено чрез течно-сцинтилационен анализ се измерват естествените радиоактивни семейства, които включват изотопите на ^{226}Ra , ^{238}U , ^{210}Pb , ^{222}Rn , ^{231}Pa , ^{234}Th . Течно-сцинтилационният анализ се използва и при оценяване на концентрациите на радионуклидите, следствие от ядрената индустрия- ^3H , ^{14}C , ^{35}S , ^{55}Fe , ^{85}Kr , $^{89,90}\text{Sr}$, ^{99}Th и ^{241}Pu и др[35]

3. ЕКСПЕРИМЕНТАЛНА ЧАСТ

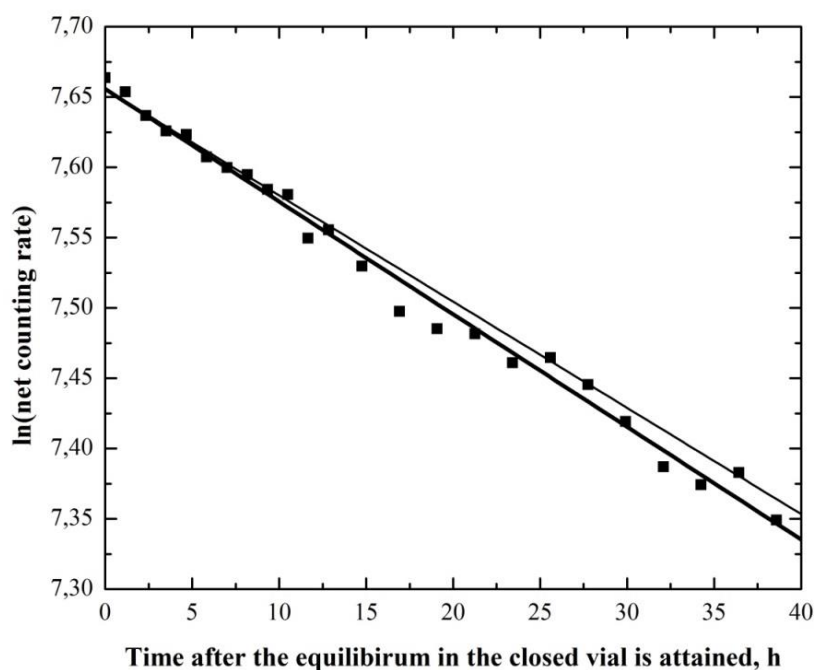
3.1 ПОДГОТОВКА НА ПРОБИТЕ

Подготовката на пробите включва облъчване на поликарбонатите в радонова среда, поставяне на поликарбонатните гранули, абсорбирали радон в стъклени или пластмасови шишета за течно-сцинтилационно броене, и добавяне на течно-сцинтилационен коктейл към тях. Обикновено вместимостта на течно-сцинтилационните шишета, които се използват в стандартните автоматични течно-сцинтилационни спектрометри варира от 4 до 20мл обем/вместимост. В настоящите експерименти са използвани пластмасови течно-сцинтилационни шишета с обем 20 мл-модел DIN 22, с капачка фолио. (Фиг. 14).

Те са тествани за херметичност по отношение на ^{222}Rn . Резултатите от тези експерименти [25] показват, че затворените шишета, съдържащи поликарбонат и течно-сцинтилационен коктейл могат да бъдат смятани за херметични по отношение на ^{222}Rn в първите 24 часа с 1.1 % неопределеност (Фигура 15). Течно-сцинтилационните шишета се помещават в раклички, които побират между 12-18 сцинтилационни шишета или проби.



Фигура 14. Снимка на шишета за сцинтилационно броене, използвани в настоящите експерименти



Фигура 15. Изследване на зависимостта на чистата скорост на броене от времето за затворено течно-сцинтилационно шише. Пробата съдържа 7гр. поликарбонатен прах², облъчен с радон, смесен с 15гр. течно-сцинтилационен коктейл. На фигурата са показани експерименталните стойности, фитирани (по-плътната линия), и правата, описваща разпада на радон (по-тънката линия). Експерименталната стойност от линейния фит за времето на полуразпад на ²²²Rn е $T_{1/2} = 86.6 \pm 1.9\text{h}$. Сигналят намалява по-бързо от характерното време на полуразпад на ²²²Rn, което е $T_{1/2} = 91.75\text{h}$. Разликите между установеното и измереното време на полуразпад в края на 24 час е по-малко от 1.1%. [25]

² Поликарбонатният прах е с размери от порядъка на 100микрона (в сравнение с поликарбонатните гранули с характерни размери 2мм)[25]

3.2 ЕКСПЕРИМЕНТ ЗА КАЛИБРИРАНЕ НА ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОНЕН СПЕКТРОМЕТЪР RACK- BETA SPECTRAL 1219

За калибриране на Rack- Beta Spectral 1219 за измерване на активността на ^{222}Rn , абсорбирана в поликарбонатни гранули са използвани поликарбонатни гранули Macrolon®, с форма на елиптичен цилиндър с височина $h=2.65\text{ mm}$ и полуоси $a=1.78\text{ mm}$ и $b=1.17\text{ mm}$ (Фигура 16). Гранулите бяха разстлани в единичен слой и облъчени с ^{222}Rn в херметичен ексикатор за време $t = 70\text{ ч}$. След края на облъчването гранулите бяха оставени да десорбират във въздушна среда, в която няма радон, за четири часа, за достигане на равновесие между ^{222}Rn и дъщерните му продукти. След достигане на равновесие активността на гранулите беше измерена за 10 мин на полупроводников детектор от свръхчист германий (ORTEC, с относителна ефективност 24.9% и 1.9keV разделителна способност за 1332 keV линията на ^{60}Co), използвайки гама-линиите с енергии 295 и 352 keV на ^{214}Pb . Непосредствено след измерванията на германиевия детектор, гранулите бяха поставени в пластмасови сцинтилационни шишета (модел DIN 22, с капачка с фолио) - по 15гр. гранули във всяко шише, след което беше добавен 10ml течно-сцинтилационен коктейл Ultima Gold LLT. След което пробите бяха измерени на спектрометъра за време $t=600\text{s}$.

Фигура 16. Поликарбонатни гранули Macrolon®



3.2.1 ОЦЕНКА НА АКТИВНОСТТА НА ^{222}Rn В ПОЛИКАРБОНАТНИ ГРАНУЛИ ЧРЕЗ ИЗМЕРВАНЕ НА ДЕТЕКТОР ОТ СВРЪХЧИСТ ГЕРМАНИЙ

След достигане на радиоактивното равновесие, поликарбонатните гранули бяха поставени в пластмасов съд за измерване на детектора от свръхчист германий в геометрия Marinelli 1L. Бяха проведени няколко последователни измервания, целящи установяване на чистата скорост в пика на пълно поглъщане на ^{214}Pb с енергия 352 keV. Връзката между чистата скорост на броене в пика на пълно поглъщане и активността на ^{214}Pb се дава със следната формула :

$$n = \varepsilon \cdot A \cdot q \quad (15)$$

Където n - чистата скорост на броене в пика на пълно поглъщане;

A - активността на ^{214}Pb в измерваните гранули,

ε - ефективност за регистрация в пика на пълно поглъщане с енергия 352 keV за дадената геометрия на измерване и q - квантов добив за линията с 352 keV на ^{214}Pb . Тъй като сме изчакали достигане на радиоактивно равновесие между ^{222}Rn и ^{214}Pb , горната формула дава връзката между измерената скорост на броене с германиевия детектор и активността на ^{214}Pb , която от своя страна е равна на активността на ^{222}Rn в поликарбонатните гранули. Активността на ^{222}Rn е получена чрез анализ на получените спектри [36].

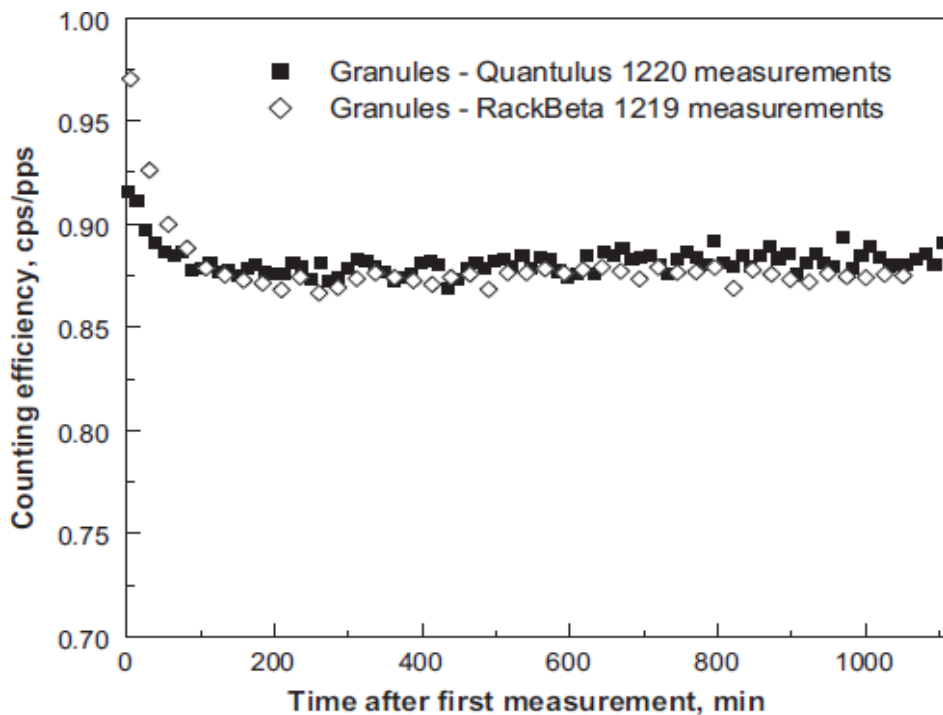
3.2.2 ИЗМЕРВАНЕ НА ГРАНУЛИТЕ, СМЕСЕНИ С ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОНЕН КОКТЕЙЛ В РЕЖИМ НА ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННО БРОЕНЕ НА RACK-BETA SPECTRAL 1219

Веднага след измерването с германиевия детектор, поликарбонатните образци бяха затворени в пластмасови шишета за течно-сцинтилационно броене, прибавен бе течно-сцинтилационен коктейл и впоследствие бяха измерени на спектрометъра. В две серии измервания е извършено калибриране на Rack Beta-Spectral 1219, като крайната ефективност на течно-сцинтилационно броене е осреднена по тях. Резултатите са представени в Таблица1. Резултатите са за 15гр гранули, смесени с 10мл течно-сцинтилационен коктейл ULTIMA GOLD LLT by Perkin Elmer в пластмасови шишета за течно-сцинтилационно броене. Неопределеностите са дадени на ниво 1σ (доверителен интервал 68%).

N_0	ε_c	$\sigma_{\varepsilon c}$
1	4,58	0,26
2	4,53	0,26
Average	4,56	0,18

Таблица1. Ефективност на течно-сцинтилационно броене ε_c , получена в настоящата работа

Детайлните експерименти за изследване на ефективността на броене и ефективността на пробовземане при различни режими на облъчване и на измерване показват някои предимства на течно-сцинтилационното измерване на поликарбонатния материал. Експерименти по оценка на ефективността на броене на поликарбонатни образци, облъчени с ^{222}Rn във вода [21], проведени чрез течно-сцинтилационните спектрометра Rack Beta- Spectral 1219 и Quantulus-1220 показват че съществува добра корелация между измерените ефективности на броене на двата спектрометра (Фигура 17). Тези експерименти показват още, че ефективността на пълната ($\alpha + \beta$) скорост на течно-сцинтилационно броене остава постоянна в интервала от 3 до 18 часа след облъчването, което означава, че спектрометри без функция за анализ на импулсите по форма могат да се използват за течно-сцинтилационен анализ на ^{222}Rn . Експериментите по калибриране на Rack Beta-Spectral 1219 за измерване концентрацията на ^{222}Rn във води [37] демонстрират, че не се наблюдава промяна на ефективността на течно-сцинтилационно броене в първите 50 часа след затваряне на пробите.



Фигура 17. Ефективностите на течно-сцинтилационно броене, пресметнати по формулата за ϵ_c . Спадането на ефективността в първите три часа от измерването се дължи на отлагането на разпадните продукти на радона върху повърхността на поликарбоната [21].

3.2.3 ОЦЕНКА НА НЕОПРЕДЕЛЕНОСТИТЕ

Неопределеността на ефективността на броене оценяваме от:

$\delta_{\varepsilon}^2 = \delta_{n_0}^2 + \delta_{Apc}^2$ (16), като $\delta_{n_0} = \frac{\sigma_{n_0}}{n_0}$ и $\delta_{Apc} = \frac{\sigma_{Apc}}{A}$. Неопределеността на чистата скорост на броене/ от течно-сцинтилационния спектрометър/ сме сметнали чрез:

$$\sigma_{n_0} = \sqrt{\sigma_{ns}^2 + \sigma_{nb}^2} \quad (17)$$

Неопределеността на активността, получена от гама-спектроскопичните измервания, оценяваме като: $\sigma_A = \sqrt{\sigma_{n_0}^2 + \sigma_{\varepsilon f}^2}$ (18), като приемаме, че ефективността за регистрация в пика на пълно поглъщане има неопределеност 5%. И отново за грешката на чистата скорост на броене, определена от детектора от свръхчист германий използваме:

$\sigma_{n_0} = \sqrt{\sigma_{ns}^2 + \sigma_{nb}^2}$ (19). Водещ принос при оценяването на неопределеността на ефективността на течно-сцинтилационното измерване има неопределеността на активността, измерена на детектора от свръхчист германий.

3.3 ЕКСПЕРИМЕНТ ЗА ПРОСЛЕДЯВАНЕ ОТКЛИКА НА СИСТЕМАТА В РЕЖИМ НА ТЕЧНО-СЦИНТИЛАЦИОННО БРОЕНЕ В ЗАВИСИМОСТ ОТ КОЛИЧЕСТВОТО ПОЛИКАРБОНАТНИ ГРАНУЛИ

В този експеримент поликарбонатните гранули бяха изложени на високи активности на ^{222}Rn във въздушна среда. Непосредствено след края на облъчването поликарбонатните гранули, в различни количества, бяха поставени в пластмасови шишета за течно-сцинтилационно броене, като бе прибавен течен сцинтилатор. След това образците бяха измерени многократно в цикъл на спектрометъра, за да се проследи поведението на ефективността на броене във времето. Експериментът показва, че ефективността на броене не се променя в първите 27 часа след първото измерване. Важно е да се отбележи, че непосредственото затваряне на гранулите след края на облъчването в пластмасовите шишета и добавяне на течен сцинтилатор намалява в голяма степен скоростта на десорбция на ^{222}Rn от гранулите. Резултатите от експеримента са изложени в Таблица 2.

Поликарбонатните гранули бяха разпределени в десет шишета, които измерихме в 8 последователни серии, покриващи времеви интервал от 27.4 часа след първото измерване. Времето за измерване на всеки образец бе 4 мин. Зависимостта на чистата скорост на броене от масата на гранулите бе фитирана с права линия за всяка серия. Параметрите на фита са показани в таблицата. На всички скорости на броене бе направена корекция за разпад като скоростите на броене бяха приведени към началото на първото измерване по следната формула:

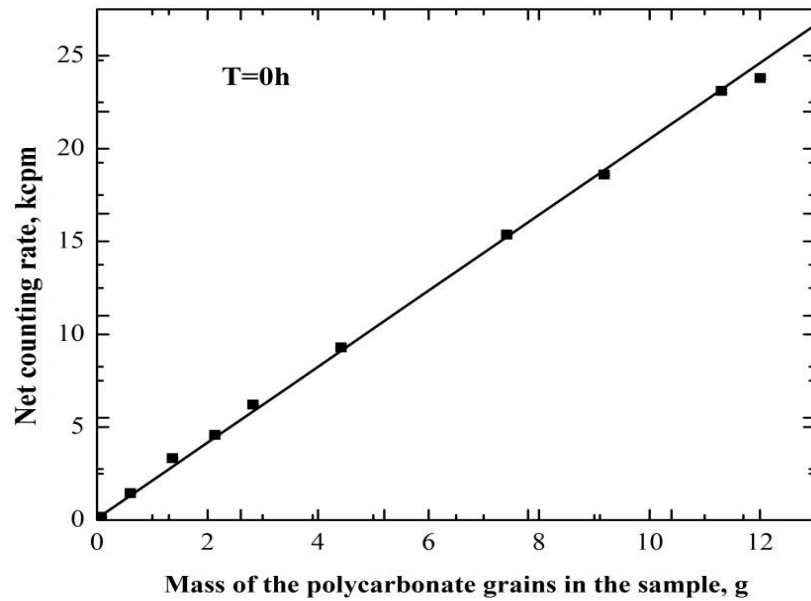
$$n_{corr} = n_0 e^{\lambda \Delta t} \quad (20)$$

Където n_{corr} е коригираната за разпад за време Δt скорост на броене; n_0 е скоростта на броене (коригирана за фон).

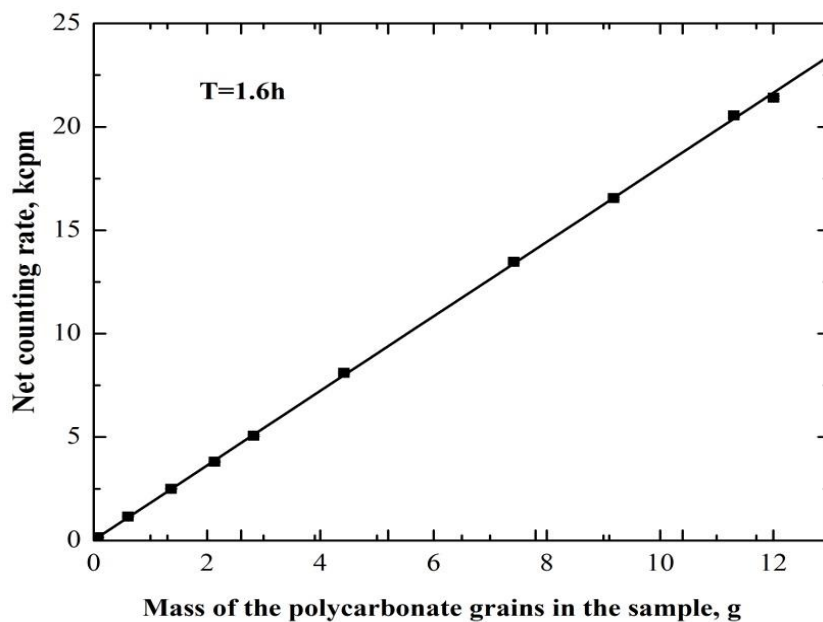
Линеен фит : $n_0=a*m+b$							
N_0	Време след първото измерване[h]	Параметър а [срм/g]	Неопределеност на а [срм/g]	Параметър b [срм]	Неопределеност на b[срм/g]	Adj.R-square	
1	0	2044	30	81	61	0.9981	
2	1.6	1801.4	6.8	28	14	0.99987	
3	3.25	1786.3	4.8	31	10	0.99994	
4	4.7	1791.4	5.5	11	11	0.99992	
5	6.5	1792.4	7.6	13	16	0.9984	
6	21.5	1800.7	6.9	15	15	0.9987	
7	25.3	1792.6	7.8	32	17	0.9983	
8	27.4	1794.2	5.1	19	10	0.99993	

Таблица 2. Резултати от експеримента за проследяване отклика на системата в режим на течно-сцинтилационно броене в зависимост от количеството поликарбонатни гранули. Средните стойности на параметъра а (осреднен по измервания от 2 до 8) и на стандартното му отклонение σ_a са $\bar{a}= 1794$ срм/g и $\sigma_a=5.3$ срм/g

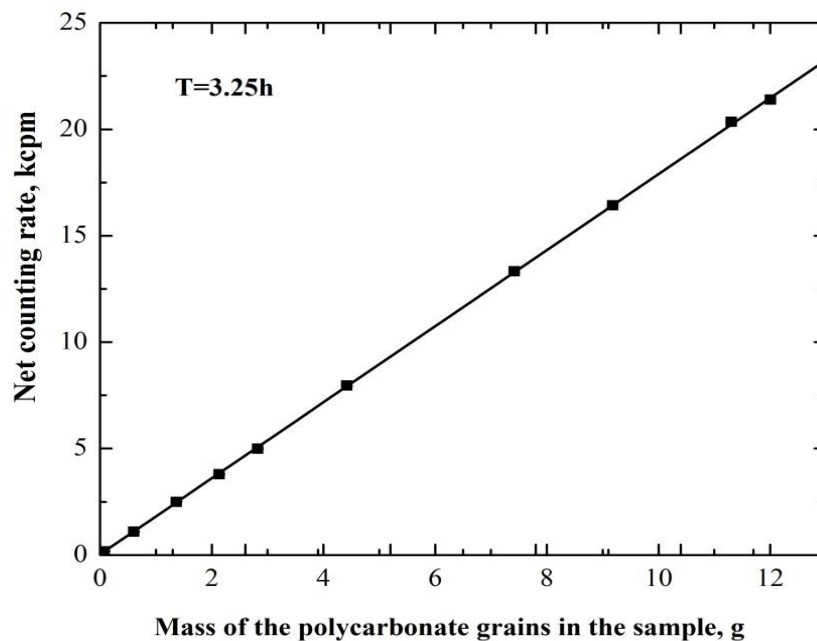
Серия № 1 на пробите бе измерена 2 часа и 13мин след края на облъчването, когато все още ^{222}Rn не бе достигнал равновесие с дъщерните си продукти. На графика 16, представена по-долу, се вижда че точките са по-разхвърляни спрямо фитиращата права в сравнение с другите серии измервания. Резултатите от всички останали серии измервания (фиг.18- фиг.25) показват, че се наблюдава добра линейна корелация между измерената чиста скорост на броене и масата на гранулите. Стойностите на наклоните на фитиращите прави за серии от 2 до 8 са много близки една с друга и еднакви в рамките на неопределеностите σ_a . Стойностите на пресечните точки на фитиращите прави с ординатата са малки и сравними с оценените неопределености σ_b . Забелязва се, че активността на ^{222}Rn е строго пропорционална на масата на гранулите. Еднаквостта на стойностите на наклоните на линейните фитове предполага, че ефективността на броене не се променя.



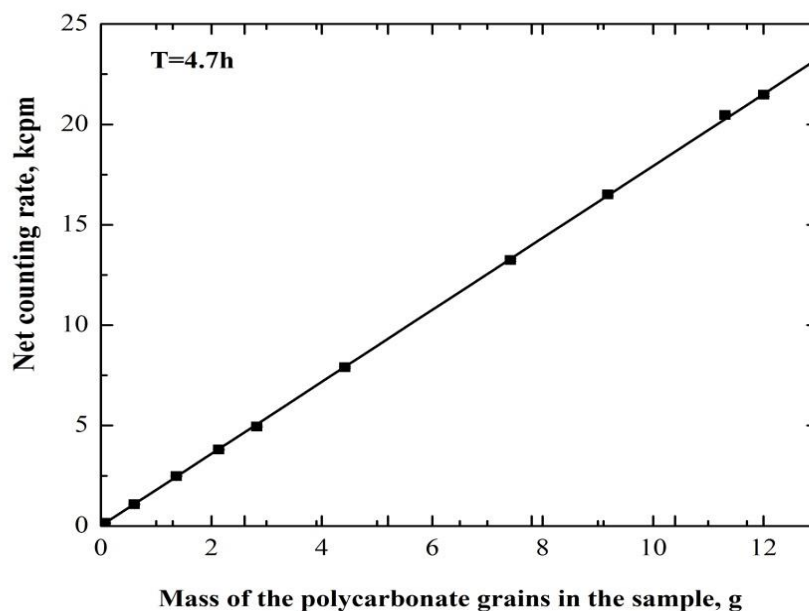
Фигура 18. Зависимост на чистата скорост на броене(коригирана с фона) от масата на гранулите в образца за първата серия измервания



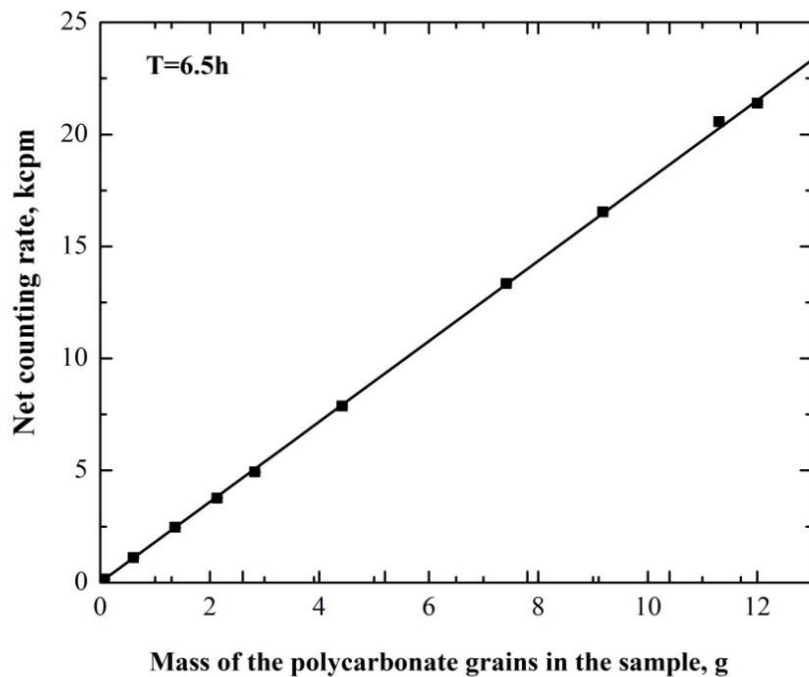
Фигура 19. Зависимост на чистата скорост на броене(коригирана с фона) от масата на гранулите в образца, 1.6 часа след първото измерване



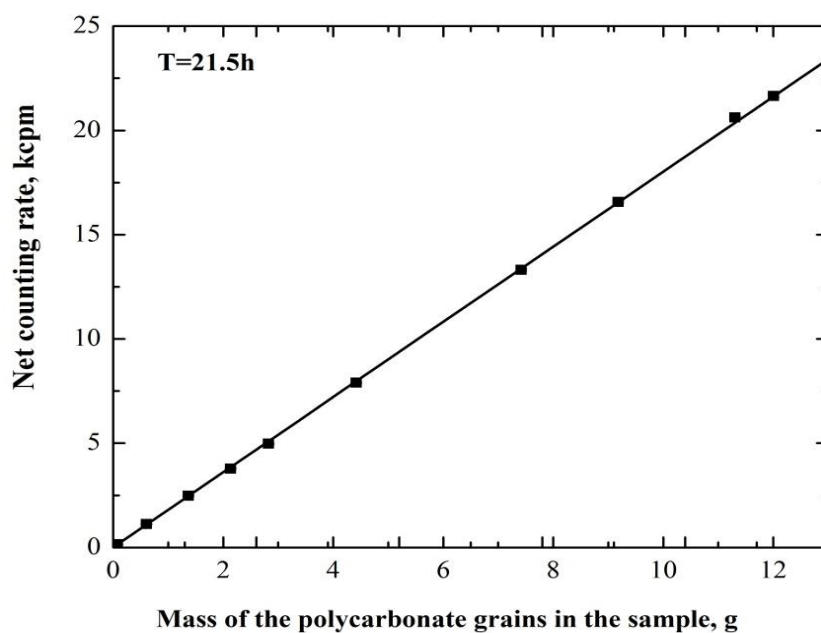
Фигура 20. Зависимост на чистата скорост на броене(коригирана с фона) от масата на гранулите в образца, 3.25 часа след първото измерване



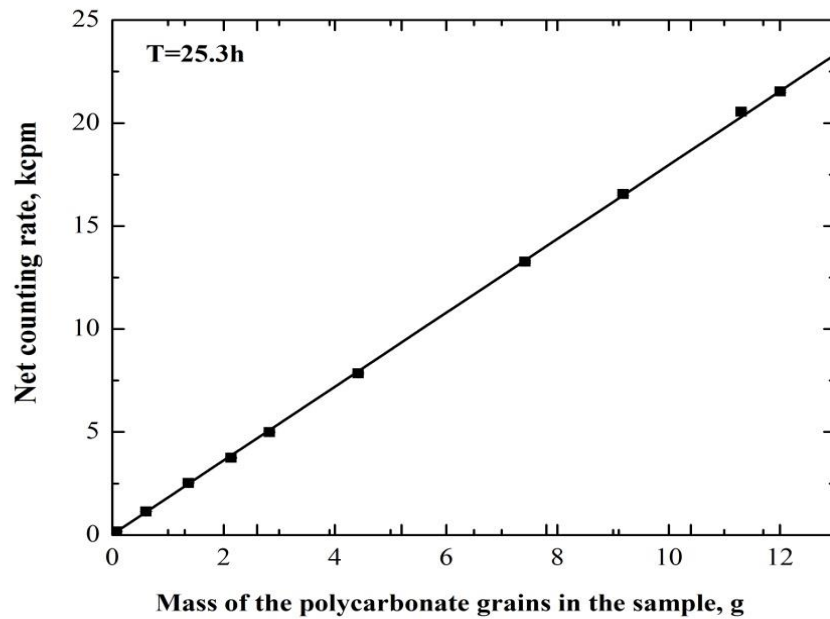
Фигура 21. Зависимост на чистата скорост на броене(коригирана с фона) от масата на гранулите в образца, 4.7 часа след първото измерване



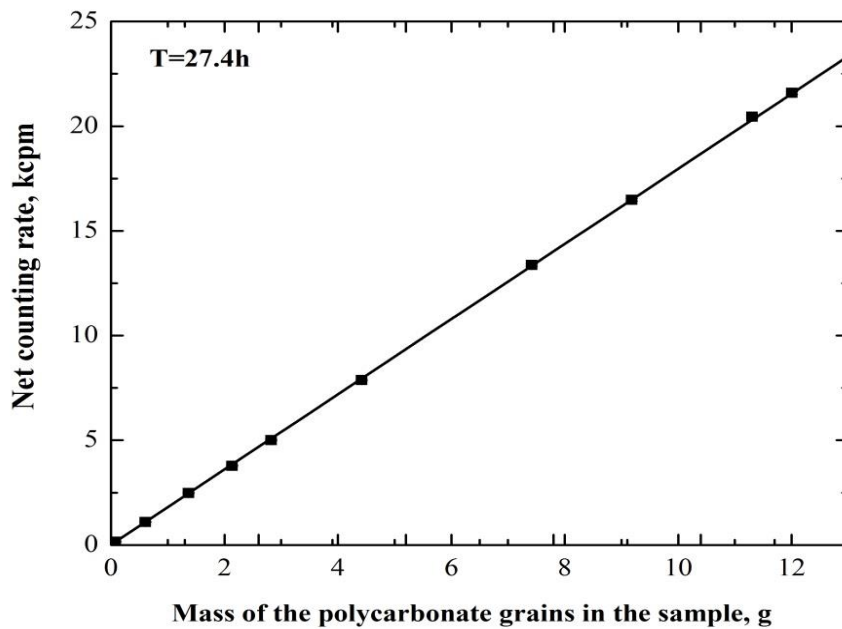
Фигура 22. Зависимост на чистата скорост на броене(коригирана с фона) от масата на гранулите в образца, 6.5 часа след първото измерване



Фигура 23. Зависимост на чистата скорост на броене(коригирана с фона) от масата на гранулите в образца, 21.5 часа след първото измерване



Фигура 24. Зависимост на чистата скорост на броене(коригирана с фона) от масата на гранулите в образца, 25.3 часа след първото измерване



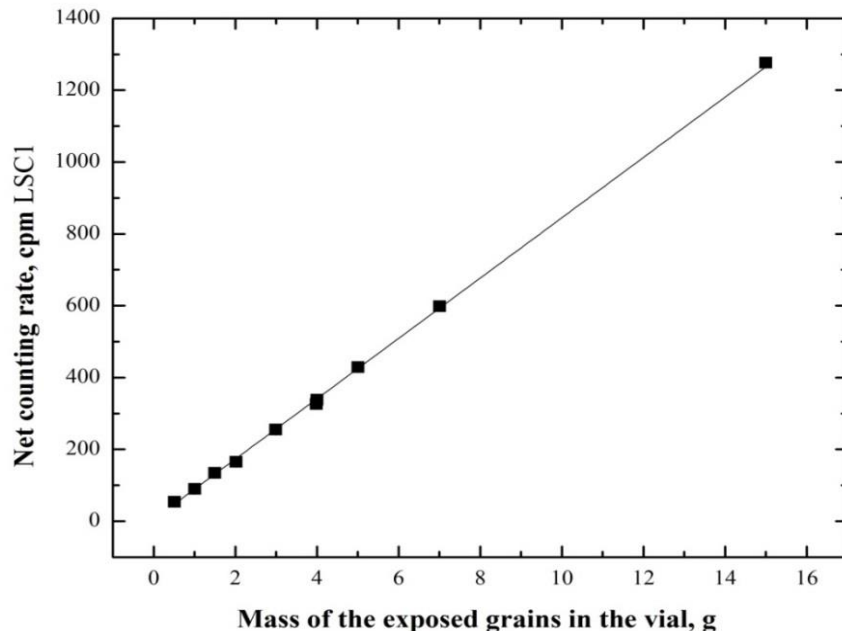
Фигура 25. Зависимост на чистата скорост на броене(коригирана с фона) от масата на гранулите в образца, 27.4 часа след първото измерване

3.3 ЕКСПЕРИМЕНТ ЗА ИЗСЛЕДВАНЕ НА ПРОЗРАЧНОСТТА НА ПОЛИКАРБОНАТНИ ГРАНУЛИ, СМЕСЕНИ С ТЕЧЕН СЦИНТИЛАТОР

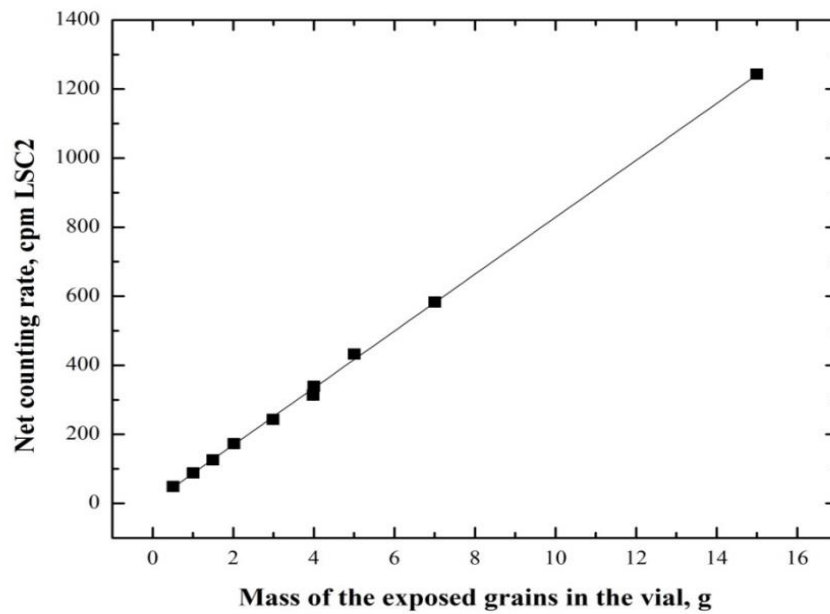
В този експеримент поликарбонатните гранули, облъчени с ^{222}Rn във въздушна среда, се смесват с необлъчени гранули в десет различни пропорции. След това се поставят в десет различни пластмасови шишета за течно-сцинтилационно броене, добавя се течно-сцинтилационен коктейл и се измерват на спектрометъра.

Прозрачността на пробата от поликарбонатни гранули, смесени с течно-сцинтилационен коктейл с обща маса 15грама бе изследвана в четири последователни серии от измервания на Rack- Beta Spectral 1219. Всяка от десетте пробите бе измервана за 20 мин в рамките на една серия. Резултатите от експеримента са представени на Фигура 26-29 за серии измервания от 1 до 4.

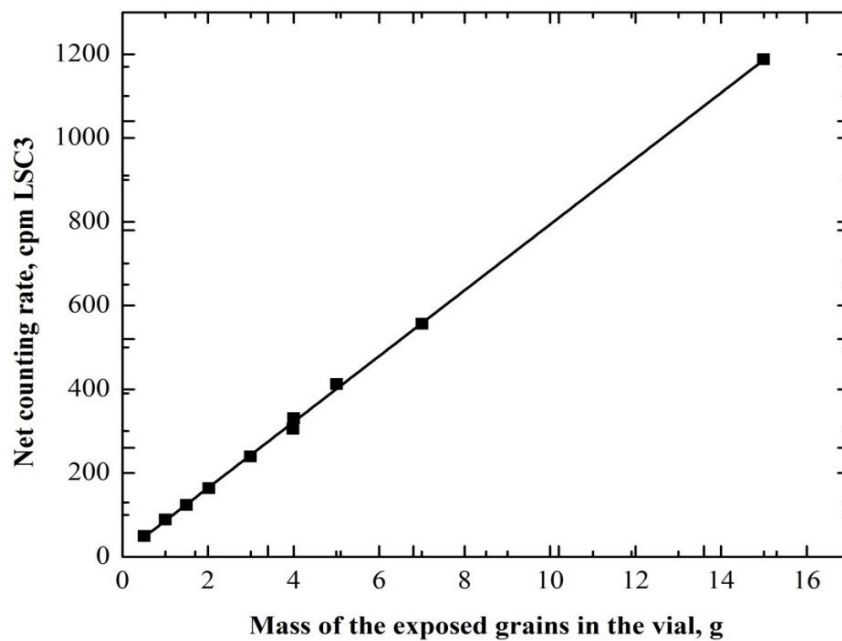
В графиките е използвана чистата скорост на броене, като от измерената скорост на броене на спектрометъра е извадена фоновата скорост на броене $n_b = 71,87 \text{ cpm}$. Последната е определена в отделен експеримент за измерване на фоновата скорост на броене на Rack- Beta Spectral 1219 [24]. Зависимостта на чистата скорост на броене от масата на облъчените гранули бе фитирана с линейна функция. От фигурите се вижда, че се наблюдава добра линейна зависимост и в четирите серии измервания, от което можем да направим извода, че отношението на облъчени към необлъчени гранули не влияе на ефективността на системата, и следователно необлъчените гранули не влияят на прозрачността на пробата.



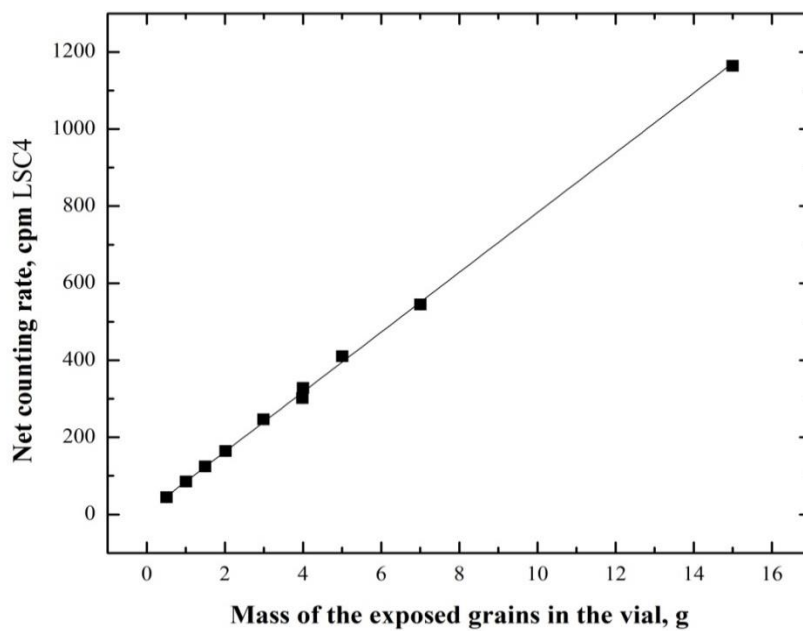
Фигура 26. Зависимост на чистата скорост на броене от масата на облъчени гранули в първата серия измервания



Фигура 27. Зависимост на чистата скорост на броене от масата на облъчени гранули във втората серия измервания



Фигура 28. Зависимост на чистата скорост на броене от масата на облъчени гранули в третата серия измервания



Фигура 29. Зависимост на чистата скорост на броене от масата на облъчени гранули в четвъртата серия измервания

4.ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящата дипломна работа е проведен експеримент за калибриране на течно-сцинтилационния спектрометър Rack-Beta Spectral 1219 за измерване на активността на ^{222}Rn , абсорбиран в поликарбонатни гранули посредством течно-сцинтилационно броене. Изследвано е доколко системата поликарбонатни гранули плюс течно-сцинтилационен коктейл е прозрачна за светлината, излъчена от течно-сцинтилационния коктейл. Изследвано е също влиянието на надбавянето на необлъчени гранули в пробата върху резултатите от измерването.

За ефективността на броене на системата (ε_c) е получена стойността $\varepsilon_c = 4.56 \pm 0.18$.

Като се има предвид, че при един разпад на радона се излъчват 5 частици от него и краткоживеещите му продукти на разпадане, от горния резултат става ясно че при този метод имаме много висока ефективност за регистрация на частиците, излъчени в пробата. След като е определена горната ефективност и с помощта на модела на сорбция и десорбция на радон в поликарбонати, е възможно чрез течно-сцинтилационни измервания да се направи оценка на обемната активност на ^{222}Rn в околната среда. Трябва да се отбележи още, че направените експерименти показаха, че ефективността на броене не се променя в първите 27 часа след първото измерване. Тази константност на ефективността позволява да се използват дълги времена на измерване на пробите, чрез което да се достигнат по-ниски нива на минимално детектируемите активности.

Изследвания на отклика на системата по отношение на количеството измервани поликарбонати показаха, че в много широк диапазон от количества на измерваните поликарбонати (0.07-15 g), ефективността на системата остава постоянна. Проведени са експерименти по изследване на прозрачността на системата поликарбонатни гранули плюс течно-сцинтилационен коктейл. При тези експерименти е изследван отклика на системата при броене на смес от облъчени и необлъчени поликарбонатни гранули в различни пропорции. Резултатите показват, че ефективността на броене не зависи от пропорцията на смесване на облъчвани и необлъчвани гранули. Това е индикация, че сместта от поликарбонатни гранули и течно-сцинтилационен коктейл е прозрачна за светлината, излъчвана от коктейла.

Резултатите от настоящата работа показват, че течно-сцинтилационното измерване на радон, абсорбиран в поликарбонатни гранули, има потенциал да се развие като експресен метод за оценка на концентрациите на радон в околната среда. Част от резултатите, получени в рамките на изследванията по дипломната работа, са публикувани в [24].

БИБЛИОГРАФИЯ

- [1] IAEA Safety Standards Series No. GSR Part 3
- [2] UNSCEAR 2008 *Report to the General Assembly, Volume 1, Scientific Annex B- Exposures of the public and workers from various sources of radiation*
- [3] World Health Organization. *WHO handbook on indoor radon: a public health perspective*. WHO press, Geneva, Switzerland, 2009.
- [4] D.Pressyanov, J.Buysse, J.Proffijn, G.Meesen, and A.Van Deynse, *The compact disc as a radon detector- A laboratory study of the method*, Health Phys, Vol.84,pp.642-651,May 2003;
- [5] I.Dimitrova, K.Mitev,D. Pressyanov, S.Georgiev, T.Boshkova, *Measurement of ^{222}Rn and ^{226}Ra in water by absorption of radon in polycarbonates and etching alpha-tracks*, Radiation Measurements, 46 (2011) 119-126.
- [6] D.Pressyanov, K.Mitev, S.Georgiev, I.Dimitrova, *Radon mapping by retrospective measurements- an approach based on CDs/DVDs*, Journal of Environmental Radioactivity, 101 (2010) 821-825
- [7] WHO- *Guidelines for indoor air quality: Selected pollutants*, Chapter 7: Radon, ISBN 978 92 890 0213 4
- [8] Marsh JW, et al. *Dosimetric models used in the alpha-risk project to quantify exposure of uranium miners to radon gas and its progeny*. Radiation Protection Dosimetry. 2008;130:101–106
- [9] Darby S et al. (2005). *Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies*. BMJ, 330(7485):223-227.
- Darby S et al. (2006). *Residential radon and lung cancer: detailed results of a collaborative analysis of individual data on 7148 subjects with lung cancer and 14208 subjects without lung cancer from 13 epidemiologic studies in Europe*. Scand J Work Environ Health, 32 Suppl1:1-83.
- [10] Krewski D et al. (2005). *Residential radon and risk of lung cancer: a combined analysis of 7 North American case-control studies*. Epidemiology, 16:137-145.
- Krewski D et al. (2006). *A combined analysis of North American case-control studies of residential radon and lung cancer*. J Toxicol Environ Health A, 69:533-597.
- [11] Lubin JH et al. (2004). *Risk of lung cancer and residential radon in China: pooled results of two studies*. Int J Cancer, 109:132-137.
- [12] *Национална програма за намаляване въздействието на радон в сгради върху здравето на българското население за периода 2013-2017г.*- достъпна на <http://www.mh.government.bg/Articles.aspx?lang=bg-BG&pageid=515>
- [13] DurrIDGE Co.Inc.RAD7 User's manual, updated Dec.2011. Достъпен на: <http://www.durridge.com/documentation/RAD7Manual.pdf>
- [14] Практикум по Дозиметрия и лъчезащита, *Определяне на концентрацията на дъщерните продукти на радон- 222 във въздух*, СУ „Св. Климент Охридски“, Физически факултет

- [15] Страхил Георгиев, дисертация, *Ядренофизични методи за изследване на миграцията на радиоактивни газове*, СУ „Св. Климент Охридски“ 2012
- [16] Ивелина Димитрова, дисертация, *Измерване активността на ^{222}Rn във въздушна и водна среда чрез абсорбция в поликарбонати*, СУ „Св. Климент Охридски“ 2011
- [17] D. Pressyanov, I. Dimitrova, K. Mitev S. Georgiev, Retrospective Radon Measurements: Techniques and Perspectives, Chapter 4 in *“Handbook of Radon: Properties, Applications and Health”*, editors: Zachary Li and Christopher Feng, 2012, Nova Science Publishers, Inc., ISBN: 978-1-62100-177-5
- [18] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Van Deynse, A. Poffijn, and G. Meesen. *Indoor radon detected by compact disks*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A, 457:665–666, 2001.
- [19] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Poffijn, G. Meesen, and A. Van Deynse. *The compact disk as radon detector - a laboratory study of the method*. Health Phys., 84:642–651, 2003.
- [20] D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, I. Dimitrova, *“Sorption and desorption of radioactive noble gases in polycarbonates”*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, section A, 598 (2009) 620-627.
- [21] K. Mitev, I. Dimitrova, V. Zhivkova, S. Georgiev, G. Gerganov, D. Pressyanov, T. Boshkova, *“Measurement of Rn-222 in water by absorption in polycarbonates and liquid scintillation counting”*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, section A, **677** (2012) 31-40.
- [22] D. Pressyanov *Modelling a ^{222}Rn measurement technique, based on absorption in polycarbonates and track-etch counting*, Health Physics 2009 97(6) :604-12
- [23] С. Георгиев, К. Митев, И. Димитрова, Д. Пресиянов *Компютърен код за прецизно пресмятане на активността на радиоактивни благородни газове абсорбирани в поликарбонатни гранули* Сб. XXI национален научен симпозиум с международно участие "Метрология и метрологично осигуряване 2011" - Созопол 10-14.09.2011, сс. 278-283
- [24] К. Митев, V. Zhivkova, D. Pressyanov, S. Georgiev, I. Dimitrova , G.Gerganov, T. Boshkova *Liquid scintillation counting of polycarbonates: A sensitive technique for measurement of activity concentration of some radioactive noble gases* Elsevier, 2013
- [25] К. Митев , S. Georgiev , D. Pressyanov , I. Dimitrova , V. Zhivkova , T. Boshkova *A high sensitivity method for measurement of Radon-222 based on liquid scintillation counting of polycarbonate powder*
- [26] Практикум по дозиметрия и лъчезащита- *Определяне на специфичната обемна активност на радон/радий във води*, СУ „Св. Климент Охридски“, Физически факултет
- [27] *Стабилност на ядрата- радиоактивни превръщания* www.atomic.phys.uni-sofia.bg
- [28] К.Митев, *On the Possibility to Detect Some Radioactive Noble Gases by Cherenkov Counting of Polycarbonates* 2014 IEEE NSS MIC Conference record, N28-1
- [29] Michael F.L'Annunziata- *Handbook of Radioactivity Analysis- – 2nd Edition, Chapter 5- Liquid-scintillation analysis: principles and practice p.349-355* Elsevier 2003

- [30] Dobromir Pressyanov, *Short solution of the radioactive decay chain equations*, Am. J. Phys. 70, p. 444.
- [31] Красимир Митев, *частна кореспонденция*
- [32] И. Димитрова, К. Митев, С. Георгиев, Д. Пресиянов Система за създаване на референтни обемни активности на Rn-222 във въздух на базата на радонов монитор RAD7 Сборник доклади от XXII национален научен симпозиум Метрология и метрологично осигуряване 2012, стр. 244-249.
- [33] Michael F.L'Annunziata- *Handbook of Radioactivity Analysis -2nd Edition Chapter 6 Environmental Liquid Scintillation analysis p. 539-541 Elsevier 2003*
- [34] Ishikawa, H., and Takiue, M. (1973). *Liquid scintillation measurement for β -ray emitters followed by γ -rays*. Nucl. Instrum. Methods 112, 437–442.
- [35] LSC Handbook of Environmental Liquid Scintillation Spectrometry, A compilation of theory and methods, Packard Instrumentary Company
- [36] Т.Бошкова, *частна кореспонденция*
- [37] К. Митев, И. Димитрова, С. Георгиев, И. Павлова, С. Илиева, Д. Дамянов, Г. Герганов Калибриране на течно-сцинтилационен спектрометър Rack Beta – Spectral 1219 за измерване на концентрацията на ^{222}Rn във води Сборник доклади от XXII национален научен симпозиум Метрология и метрологично осигуряване 2012, стр. 239-243.