

Софийски Унивеситет "Св. Климент Охридски" Физически факултет

# **ДИПЛОМНА РАБОТА**

на

Виктор Александров Арсов Ф№ 160273

# Валидиране на числен код за оценка на концентрацията на Rn-222 в околната среда чрез измерване на радон, абсорбиран в поликарбонатни гранули

Дипломен ръководител: гл. ас. Страхил Георгиев

Консултант: доц. д-р Красимир Митев

# Съдържание:

1. Увод	
2. Теоретична част	
2.1. Теоретичен модел	5
2.2. Компютърен код	9
2.3. Методи за измерване на активност в околна среда чрез поликарбонати	абсорбция в 10
2.3.1. Черенково броене	10
2.3.2. Течно-сцинтилационно броене	
3. Експериментална част	14
3.1. Експреимент 1 – Черенково броене	14
3.2. Експеримент 2 – Черенково и течно-сцинтилационно броене	
4. Резултати	19
4.1. Резултати от сорбция на поликарбонатни гранули	
4.1.1. Резултати от Експеримент 1	20
4.1.2. Резултати от Експеримент 2	
4.2. Резултати от десорбция на поликарбонатни гранули	29
4.2.1. Резултати от Експеримент 1	
4.2.2. Резултати от Експеримент 2	
4.3. Резултати от пресмятанията с компютърният код	35
4.4. Валидиране на компютърният код за гранули	
5. Заключение	
6. Използвани източници	43

## 1. Увод

Изотопът на радон Rn-222 е радиоактивен благороден газ (РБГ) с период на полуразпадане  $T_{1/2} = 3.82$  d [1]. Той е  $\alpha$ -лъчител, нестабилен изотоп на Rn (Z=86), част от радиоактивният ред на разпадане на U-238, няма мирис и цвят. Ниската химическа активност и високата подвижност му позволяват лесно да напуска местата на своето раждане, което усложнява задачата за определяне на концентрация на Rn-222 в околната среда и съответно за оценка на неговата активност. Rn-222 и неговите краткоживеещи продукти на разпадане са с основен принос за облъчването на човек от естествени източници и съставя над 50% от годишната ефективна доза за населението [2], формирана от естествени източници. Той е вторият по тежест причинител на белодробен рак след тютюнопушенето [3]. Важно и интерестно е да се следи и оценява активността на РБГ от гледна точка на радиоекологията, ядрената безопасност [4], радиационната защита [5] и др. Облъчването от радон се дължи на наличието му в жилищни и работни помещения, поради по-високи концентрации в затворени помещения отколкото на отрито [6]. Източници на радон в затворени помещения са ексхалирането му от строителни материали и почвен газ, въздух от околната среда, дееманирането му от вода в домакинството.

Поликарбонатите синтезирани на основата на "bisphenol-A" имат способността да абсорбират и концентрират РБГ от средата, в която се намират [7],[8], като концентрацията на абсорбирания РБГ е пропорционална на концентрацията в средата, в която са били облъчени. Поради тази тяхна способност, те могат да се ползват за пробовземане ("samplers") и чрез тях можем да правим оценка за обемната активност на РБГ в средата, в която са облъчени. Сигналът от натрупаната активност на абсорбираният радон в поликарбоната може да се измери гама-спетрометрометрично, чрез общо бета-броене, течно-сцинтилационно или Черенково броене и така да се определи активността в поликарбоната [5],[7],[9],[10]. След това абсорбираната активност в образеца се свързва с обемната активност на РБГ в средата, в която е бил облъчен поликарбоната. Тази връзка връзка зависи сложно от условията на облъчване (продължителност на облъчването, температура, геометрия на поликарбонатните образци и т.н.). Това затруднява широкото приложение на метода. Затова е разработен теоретичен модел, разглеждащ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати [8]. Моделът дава връзката между активността на абсорбирания РБГ в облъчените поликарбонати  $A_{PC}$  и обемната активност на РБГ в средата  $A_{\nu}$ , в която са били облъчени. Решенията на модела, описващ тази връзка представляват суми от членове на безкрайни редове, които не винаги са бързо сходящи. Поради това е необходим компютърен код, който да позволява бързи и прецизни пресмятания на решенията, получени чрез теоретичния модел. Такъв е разработен от лабораторията по "Дозиметрия и лъчезащита" във Физическият факултет на Софийски Университет "Св. Климент Охридски" [11]. За надеждното приложение на кода е нужно той да бъде валидиран. Целта на дипломната работа е да се валидира този компютърен код, за постигането на което поставяме следните задачи:

- облъчване на поликарбонати образци при конкретни (известни и контролирани) условия
- измерване на активността *А*<sub>PC</sub>, абсорбирана от тях в различни моменти от процесите на сорбция и десорбция
- пресмятане с компютърния код на активността в поликарбонатите A<sub>PC</sub> за дадените условия на сорбция и десорбция, и сравнение с експерименталните резултати

#### 2. Теоретична част

Високата абсорбционна способност за РБГ на поликарбонати, базирани на bisphenol-A (Makrofol®, Makrolon® и др.) е в основата на методи за измерване на РБГ [12],[13]. При тези методи, поликарбонати се облъчват в среда с РБГ, при което те абсорбират РБГ. След облъчването активността в тях  $A_{PC}$  се измерва и се свързва с активността на РБГ в средата  $A_{\nu}$ , в която са облъчвани. Такива методи се развиват в лабораторията "Дозиметрия и лъчезащита" към Физически факултет на СУ "Св. Климент Охридски" и имат потенциал за приложение при измерване на РБГ в различни области на науката. Например:

- Изотопите на криптон и ксенон, отделяни при работата на атомните централи, са важен индикатор за технологичния контрол и безопасността на ядрените инсталации [14].
- Изотопите на Кг-85 и Хе-133 могат да служат за следене спазването на "Договор за неразпространение на ядреното оръжие и Договора за пълна забрана на ядрените опити" [15].
- Световната здравна организация (СЗО) посочва Rn-222, като втори по тежест причинител на рак на белия дроб при пушачите, и основен при непушачите [3].

До момента е показано, че методите са приложими за измерване на радон, криптон, ксенон във въздух и вода [9],[16],[17],[18].

Процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати са сложни, зависещи от времето, условията на облъчване, температурата, геометрията на поликарбонатите. Това води до сложна, зависеща от тези условия връзка между активността абсорбирана в поликарбонатите  $A_{PC}$  и активността  $A_V$  на РБГ в средата, в която се облъчват. Затова за измервания и оценки на концентрациите на РБГ в конкретна среда е необходимо количествено описание на процесите на сорбция и десорбция в поликарбонати. Теоретичен модел описващ процесите на сорбция и десорбция на РБГ в поликарбонати е разработен и валидиран в [8].

### 2.1. Теоретичен модел

Теоретичен модел представен в [8] описва процесите на сорбция и десорбция в поликарбонати по следният начин. Когато в среда с обемна активност  $A_V$  на РБГ се поставят (облъчват) поликарбонати, РБГ се адсорбира на повърхността им. След което, чрез дифузия, РБГ се разпределя в дълбочина в поликарбоната. При липса на обемна активност ( $A_V = 0$ ) на РБГ в средата (след прекратяване на облъчването), започва процеса десорбция. Процесът се изразява в намаляване на абсорбираната активност в поликарбонатите поради изпускането й в средата и поради радиоактивното разпадане на РБГ. Тъй като по-надолу ще използваме термина "концентрация" на РБГ в среда  $C_{out}$ , връзката с обемната активност  $A_V$  е:  $A_V = \lambda C_{out}$ , където  $\lambda$  е константата на разпадане на РБГ.

Моделът описва процесите на сорбция и десорбция при следните физични условия:

- отношението между концентрациите на РБГ в поликарбоната и в околната среда на границата на тези две среди се определя от коефициента на разпределение (разтворимост):  $K = \frac{C_{PC}(t)}{C_{out}(t)}$ , който не зависи от времето [16],[17],[18]
- транспортът на атомите на РБГ в поликарбоната се описва чрез уравнението на дифузия, като се отчита радиоактивното разпадане:

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

където n(x, y, z, t) е концентрацията на атоми на РГБ в поликарбоната, D е коефициента на дифузия на РБГ,  $\lambda$  е неговата константа на разпадане.

В [8] са представени решения на уравнение (**I**) за поликарбонатни образци с различна геометрия. В *Експерименталната част* на дипломната работа, поликарбонатните образците, които използваме са гранули с форма на цилиндър с радиус R и височина H, и затова ще разгледаме теоретичният модел, приложен за тях.

В цилиндрични координати уравнение (I) придобива следният вид:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D\left(\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial n}{\partial r}\right) + \frac{\partial^2 n}{\partial z^2}\right) - \lambda n \tag{II}$$

Решението на (II) зависи от концетрацията на РБГ в средата, в която облъчваме гранулите, затова са разглеждани два случая:

- при постоянна външна концентрация на РБГ:  $C_{out}(t) = const$
- при експоненциално намаляваща външна концентрация, заради радиоактивното разпадане на РБГ:  $C_{out}(t) = C_0(t)e^{-\lambda t}$

Първият случай съответства на облъчване при постоянна обемна активност - облъчване в херметично затворена система с постоянен източник, а вторият при облъчване в херметично затворена система без източник.

Решението на (II) при сорбция за поликарбонатни гранули е:

• в режим  $C_{out}(t) = const$ :

$$n_{sorp}(r, z, t) = 8DC_{PC} \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left( \frac{1}{H^2} \frac{(2k+1)\pi}{k_m} + \frac{1}{R^2} \frac{k_m}{(2k+1)\pi} \right) \frac{J_0\left(\frac{k_m}{R}r\right)}{J_1(k_m)} \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{H}z\right) \frac{1 - e^{-\lambda_{2k+1,m}t}}{\lambda_{2k+1,m}}$$
(III)

• в режим  $C_{out}(t) = C_0(t)e^{-\lambda t}$ :

$$n_{sorp}(r, z, t) = 8DC_{PC} \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left( \frac{1}{H^2} \frac{(2k+1)\pi}{k_m} + \frac{1}{R^2} \frac{k_m}{(2k+1)\pi} \right) \frac{J_0\left(\frac{k_m}{R}r\right)}{J_1(k_m)} \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{H}z\right) \frac{e^{-\lambda t} - e^{-\lambda_{2k+1,m}t}}{\lambda_{2k+1,m} - \lambda}$$
(IV)

Решението на (II) при десорбция за поликарбонатни гранули е:

• в режим 
$$C_{out}(t) = const$$

$$n_{des}(r, z, t) = 8DC_{PC} \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left( \frac{1}{H^2} \frac{(2k+1)\pi}{k_m} + \frac{1}{R^2} \frac{k_m}{(2k+1)\pi} \right) \frac{J_0\left(\frac{k_m}{R}r\right)}{J_1(k_m)} \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{H}z\right) \frac{1 - e^{-\lambda_{2k+1,m}t_s}}{\lambda_{2k+1,m}} e^{-\lambda_{2k+1,m}t_d}$$
(V)

• в режим  $C_{out}(t) = C_0(t)e^{-\lambda t}$ :

$$n_{des}(r, z, t) = 8DC_{PC} \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left( \frac{1}{H^2} \frac{(2k+1)\pi}{k_m} + \frac{1}{R^2} \frac{k_m}{(2k+1)\pi} \right) \frac{J_0\left(\frac{k_m}{R}r\right)}{J_1(k_m)} \sin\left(\frac{(2k+1)\pi}{H}z\right) \frac{e^{-\lambda t_s} - e^{-\lambda_{2k+1,m}t_s}}{\lambda_{2k+1,m} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1,m}t_d}$$
(VI)

където в (III), (IV), (V) и (VI) D е коефициента на дифузия на РБГ,  $C_{PC} = KC_{out}$  е концентрация на РБГ на повърхността на гранулите,  $J_0$  и  $J_1$  са функции на Бесел от нулев и първи ред,  $k_m$  е *m*-ти корен на  $J_0$ ,  $t_s = t_{sorp}$  е време на сорбция,  $t_d = t_{des}$  е време на десорбция, R – радиус на циндрична гранула, H – височина на циндрична гранула.

Активността на РБГ в поликарбоната се пресмята по формулата:  $A(t) = \lambda \int_V n(V, t) dV$ В цилидрични координати има следния вид:  $A(t) = 2\pi\lambda \int_0^R \int_0^H r n_{des}(r, z) dr dz$ 

В режим на облъчване в среда с постоянна концентрация на РБГ -  $C_{out}(t) = const$ , за активността в поликарбонатни гранули се получава:

$$A(t) = 32\lambda^2 C_{PC} V \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left( \frac{L_D^2}{H^2 k_m^2} + \frac{L_D^2}{\pi^2 R^2 (2k+1)^2} \right) \frac{1 - e^{-\lambda_{2k+1,m} t_{sorp}}}{\lambda_{2k+1,m}} e^{-\lambda_{2k+1,m} t_{des}}$$
(VII)

В режим на облъчване в среда с експоненциано намаляваща концентрация на РБГ -  $C_{out}(t) = C_0(t)e^{-\lambda t}$ , за активността в поликарбонатни гранули се получава:

$$A(t) = 32\lambda^2 C_{PC} V \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \left( \frac{L_D^2}{H^2 k_m^2} + \frac{L_D^2}{\pi^2 R^2 (2k+1)^2} \right) \frac{e^{-\lambda t_{sorp}} - e^{-\lambda_{2k+1,m} t_{sorp}}}{\lambda_{2k+1,m} - \lambda} e^{-\lambda_{2k+1,m} t_{des}}$$
(VIII)

където в (VII) и (VIII) V е обема на съда, който са облъчвани гранулите,  $L_D = \sqrt{\frac{D}{\lambda}}$  е дължината на дифузия на РБГ в поликарбоната (средното разстояние, което атомите на РБГ изминават в поликарбоната),  $k_m$  е *m*-ти корен на  $J_0$ ,  $\lambda_{k,m}$  се дава като:

$$\lambda_{k,m} = \lambda \left( 1 + \left(\frac{\nu_m L_D}{R}\right)^2 + \left(\frac{(2k+1)\pi L_D}{H}\right)^2 \right)$$
(IX)

В представеният модел:

- Връзката между активността  $A_{PC}$  в поликарбонатните гранули и обемната активност  $A_V$  на РБГ в средата ( $A_V = \lambda C_{out}$ ) в която са облъчвани, се задава със сума от членове на безкрайни редове, които не са бързо сходящи [11].
- Активността в гранулите A<sub>PC</sub> може да се представи като произведение от коефициента на разтворимост K, обемната активност на РБГ в средата на облъчване A<sub>v</sub>, и функция, зависеща от дължината на дифузия L<sub>D</sub>, размерите на гранулите H и R, и времената за сорбция и десорбция t<sub>sorp</sub> и t<sub>des</sub>:

$$A_{PC} = KA_{v}f(L_{D}, H, R, t_{sorp}, t_{des}).$$

Разтворимостта К и дължината на дифузия L<sub>D</sub> на РБГ в поликарбоната, зависят от температурата, като изследване на тази зависимост е представено в [16], [17], [18].

## 2.2. Компютърен код

Температурната зависимост на K и  $L_D$  на РБГ, геометрията на поликарбонатите, времената за сорбция  $t_{sorp}$  и десорбция  $t_{des}$ , както и това, че в ураненията написани погоре, членовете на безкрайни редове не винаги са бързо сходящи, са фактори, които представляват препятствие пред прилагането на модела. Затова е разработен компютърен код, базиран на теоретичният модел, позволяващ пресмятането на активността  $A(t_{sorp}, t_{des})$  и разпределението  $n(x, y, z, t_{sorp}, t_{des})$  във времето на РБГ в поликарбонатни образци при различни условия на облъчване [11], [19]. Уравненията (III), (IV), (V), (VI), (VII), (VIII) са програмирани в кода, като k и m се задават предварително преди пускане на кода, заедно с други параметри, описани по-долу. Тъй като членовете в сумите са членове на безкрайни редове, които са сходящи, то с увеличване на стойностите на k и m,  $n(x, y, z, t_{sorp}, t_{des})$  ще се приближава до истинската стойност.

Разработеният компютърен код има следните параметри, които могат да се въвеждат или избират преди пресмятане:

- Процес сорбция или десорбция
- Режим облъчване на поликарбонатни гранули при експоненциално намаляваща  $C_{out}(t) = C_0(t)e^{-\lambda t}$  или постоянна  $C_{out}(t) = const$  обемна активност
- Среда, в която става облъчването въздух или вода
- РБГ *Kr*-85, *Xe*-133 или *Rn*-222
- Начална обемна активност  $Av [Bq/m^3]$
- Радиус на гранула *R* [mm]
- Височина на гранула *H* [mm]
- Maca на гранулите *M*[g]
- Плътност на поликарбонатните гранули ρ [g/cm<sup>3</sup>]
- Разтворимост *К*:
- Дължина на дифузия: L<sub>D</sub> [µm]
- Време на сорбция:  $T_{exp}$  [h]
- Време на десорбция:  $T_{des}$  [h]
- Стойности за сумационните коефициенти k и m:

След извършване на пресмятанията, кодът генерира подходящо структуриран текстов файл със стойности за абсорбираната активност в поликарбонатните гранули по време на сорбция и по време на десорбция. Това позволява проследяването на изменението на абсорбираната в поликарбонатите активност  $A_{PC}$  във времето. Кодът позволява и пресмятане на разпределението на РБГ в гранулите в зависимост от времената на сорбция и десорбция, но тази опция не е обект на изследванията в настоящата дипломна работа.

# 2.3. Методи за измерване на активност в околна среда чрез абсорбция в поликарбонати

Методите за измерването на абсорбираната активност в поликарбонати  $A_{PC}$ , облъчени в среда с обемна концентрация на радон  $A_V$ , включват общо бета-броене, гама-спетрометрометрично измерване, течно-сцинтилационно броене, Черенково броене. В дипломната работа са използвани Черенково броене и течно-сцинтилационно броене.

#### 2.3.1. Черенково броене

При преминаването на частица през прозрачна среда със скорост по-голяма от скоростта на светлината за дадената среда, се излъчват анизотропно светлинни фотони – Черенково светене. По треакторията на движение на частицата се поляризират локално молекули от средата, които при връщане в нормално състояние излъчват фотони. Средата може да бъде всякаква течност или твърдо тяло, които са прозрачни и имат оптична плътност n > 1. При значителни нива на Черенково светене, то може да се използва за измервания на радиоактивности [10]. Ефектът е прагов т.е. необходимо е частицата да има енергия, над която той се проявава. За  $\beta$ -частици (електрони) в среда поликарбонат праговата енергия е  $E_{th} = 148 \ keV \ [20], [21]$ . Краткоживеещите продукти на разпадане на Rn-222, които са  $\beta$ -лъчители са Pb-214 и Bi-214 ( $\phi uz. I$ ). Максималните енергиите на излъчените от тях  $\beta$ -частици са съответно E = 1019 keV за Pb-214 и

 $E = 3270 \ keV$  за Bi-214 [1], което удовлетворява горното условие за прагова енергия, необходима за ефекта. Тогава Черенковите фотони, излъчени от поликарбонатни образци, могат да бъдат регистрирани на течно-сцинтилационен спектрометър. При Черенково измерване, поликарбонатите се затварят в полиетиленови шишенца. Използването на полиетиленови шишенца прави анизотропното Черенково лъчение изотропно, което подобрява ефективността на сцинтилационния спектрометър, сравнено с използване на стъклени шишенца [10].



Фигура 1. Схема на разпад на Rn-222, част от радиоактивния ред на U-238

#### 2.3.2. Течно-сцинтилационно броене

Течно-сцинтилационното броене (LSC) е метод за измерване на активността на α- и β- лъчители с висока ефективност. При него, активното вещество (в нашия случай облъчени поликарбонати) се поставят в шишенце за течно-сцинтилационно броене и се смесва с течно-сцинтилационен (LS) коктейл. Шишенцето се затваря и се измерва сигналът от него с помощта на спектрометър. Тъй като α- и β-частиците са заредени частици, при излъчването им те отдават част или цялата си енергия на средата, в която се разпространяват. Заради малкия си пробег във вещество, те много бързо губят (отдават) своята енергия и не винаги се регистрират от детектора. Високата ефективност на течно-сцинтилационното измерване се дължи на смесването на източника (облъчените поликарбонати) със сцинтилатора. По този начин няма загуба на енергия на излъчената частица и има 100% геометрична ефективност за регистриране. При процеса на сцинтилиране (изсветване), излъчена частица от поликарбонатите предава своята енергия на молекули от течно-сцинтилационния коктейл в шишенцето, които я предават на други молекули и така, докато енергията от частицата стигне до центрове на изсветване (сцинтилатори). Вследствие на това се излъчват фотони, като броят на излъчените фотони е пропорционален на енергията на частицата. Излъчените фотони се регистрират от ФЕУ (фото-електронен умножител) и формират сигнал на спектрометъра. При Rn-222 регистрираният сигнал се формира от радона и неговите КПР - 3 α-лъчители (Rn-222, Po-218, Po-214) и 2 β-лъчители (Pb-214, Bi-214) показани на *фиг.* 1.

След прекратяване на облъчването, радонът започва да десорбира от поликарбонатите и от поликарбонатите преминава в обема на шишенцето. В случая на черенково броене част от активността на радон може да бъде загубена по време на измерването, тъй като шишенцата, които използваме не са херметични. Количеството загубена активност зависи от степента на нехерметичност (различна за различните шишенца) и това затруднява измерването на абсорбираната в поликарбонатите активност АРС. В случая на течно-сцинтилационно броене, течно-сцинтилационния коктейл задържа изпуснатия от поликарбонатите радон, при което активността остава в гранули и течно-сцинтилационен коктайл. Показано ситемата ОТ e. че преразпределението на радон между гранулите и течно-сцинтилационния коктейл не води до промяна на ефективността на броене  $\varepsilon_{count}$  (дефинирана като чистата скорост

на броене, корегирана за фона, отнесена към активността в поликарбонатите) в рамките на първите 27 h след затварянето на шишенцата, пълни с LS коктейл и облъчени поликарбонатни образци [7]. Активността в системата източник-сцинтилационен коктейл намалява с времето поради радиоактивното разпадане на радона, което позволява корекция за разпадане по време на измерването. Недостатък на този тип измерване е еднократното използване на поликарбонатни образци и шишенца при измерване, заради замърсяването им с течно-сцинтилационен коктейл, след което те се превръщат в отпадъци. Липсата на сцинтилационен коктейл при Черенковото измерване в шишенцата, позволява много кратно използване на поликарбонатите и на шишенцата за измерване.

При измерване на Rn-222 на спектрометъра, сигнала е от радона и неговите КПР. По време на облъчване на поликарбонатните образци, както в лабораторни, така и в реални условия, радонът дифундира свободно и е хомогенно разпределен във въздуха, в който се облъчват образците. Неговите КПР се отлагат по повърхността на поликарбонатите, което се нарича "plateout", като няма проста връзка между отложените КПР и радона в средата [22]. Наличието на "plateout" не позволява адекватна оценка на абсорбираната в поликарбонатите активност на радон. Това влияние се елиминира, като се изчака достатъчно време, необходимо за да се разпадне "plateout"-a. Веригата от последователни разпадания от Rn-222 до Pb-210 и периодите на полуразпадане на КПР, съответстващ на веригата от  $\phi uc. 1$  се оценява на 40 min. Времето, което трябва да се изчака зависи от отношението между активността от "plateout"-а и активността на радона. При измервания на радон, при които сигнала от КПР е сравним с този от радона, са необходими минимум 4 периода на полуразпадане [22].

#### 3. Експериментална част

За валидирането на кода са планирани два експеримента, в които ще облъчим поликарбонатни гранули във въздушна среда с Rn-222 в система от херметични съдове. В различни моменти ще отваряме съдовете и ще проследим изменението на абсорбираната активност в облъчените поликарбонатни гранули при процесите на сорбция и десорбция във времето. Получените данни от измерването на сигнала от абсорбирания радон и неговите КПР в гранулите, ще сравним с данните, пресметнати от компютърният код за същите условия, при които сме провели експериментите. Така ще можем да видим дали кода пресмята адекватно абсорбираната активност, като по този начин го валидираме за гранули.

#### 3.1. Експеримент 1 – Черенково броене

За целите на експеримента ще подготвим активност **A** в барботьор (съд), който ще използваме за облъчване на поликарбонатни гранули. Източникът, който ще използваме е еманиращ Ra-226 със сертифицирана активност  $A_{cert} = 104,5 \text{ kBq} \pm 1.5\%$  (към 01.05.2006 г.). След продухване на източника, с което отстраняваме предварително натрупаната активност, можем да пресметнем активността, която ще се натрупа към даден момент, по закона на Поасон за радиоактивното разпадане:

$$\mathbf{A} = \int_{0}^{t} \mathbf{A}_{0} e^{-\lambda t} \, dt \tag{X}$$

От формула (X) следва, че Rn-222 се натрупва с времето в обема на източника Ra-226 по следния закон:

$$\mathbf{A} = \mathbf{E}\mathbf{A}_{\mathbf{0}}(\mathbf{1} - \boldsymbol{e}^{-\lambda t}) \tag{XI}$$

където A е активността му след време t,  $A_0$  е активността на източника по сертификат  $A_{cert}$ ,  $\lambda$  е константата на разпадане на Rn-222, E е еманиционна способност на източника ( $E \approx 0.998$ , затова приемаме E = 1).

След продухването, изчакваме определено време, за да се натрупа желаната от нас активност в източника, която може да бъде пресметната по формула (**XI**). След това свързваме източника към перисталтична помпа и барботьора. Чрез помпата ще разпределим активността от източника хомогенно в цялата система. Обемната активност в системата с барботьора се пресмята като:

$$A_V = \frac{A}{V} = \frac{A_0}{V} \left( 1 - e^{-\lambda t} \right) \tag{XII}$$

където:

 $\lambda = 0,0075542$  [ h<sup>-1</sup>] - константата на разпадане на Rn-222

t [ h ] - времето необходимо за достигане на конкретна обемна концентрация

 $\mathbf{A}_{\mathbf{0}}$  [ kBq ] - активност на източника

V [m<sup>3</sup>] - обема на системата

Активността в барботьора се получава като разделим активността в системата  $A_V$  на обема на барботьора:  $A_b = \frac{A_v}{v_b}$ 

От формула (**XII**), ако изразим **t**, можем да определим колко време ни е необходимо за достигането до желаната активност в барботьора.

Така с подготвената активност в барботьора ще използваме за облъчване на гранули, в затворената *система 1*, показана на *фиг. 2*. Тя се състои се от перисталтична помпа, барботьора с предварително подготвената активност на Rn-222, 5 херметичнни съда, съдържащи поликарбонатни гранули, радонов монитор RAD7 за следене на обемната концентрация в системата. Помпата е необходима, за да може активността от барботьора да циркулира в обема на цялата свързана система, като по този начин се хомогенизира. Така ще осигурим среда с радон, в която гранулите ще се облъчват и ще абсорбират Rn-222.

Начинът, по който пресмятаме активността в системата по-горе ни дава приблизителна оценка за нея. За точно определяне на обемната активност в *система 1* използваме радоновият монитор RAD7. Той е пуснат да мери докато работи помпата, за да сме сигурни че активността от барботьора е хомогенно разпределена в свързаната система. Критерий за това е, когато измерваната от RAD7 обемна активност стане постоянна в рамките на неопределеността на измерването. Когато това е на лице, взимаме средната стойност от измерванията на RAD7 (*табл. 1*), и за активността в системата  $A_v$  получаваме:  $A_v = 222,5 \text{ kBq/m}^3$ .

RAD7		
t (h)	Av (kBq/m³)	
12,07	223	
12,12	218	
12,17	221	
12,22	218	
12,27	227	
12,32	229	
12,37	223	
12,42	221	

Таблица 1. Измервания от RAD7 на активността в система 1



Фигура 2. Схема на експерименталната установка - система 1

След хомогенизирането помпата се спира и системата се разкача, като съдовете с гранули остават херметично затворени. Активността на Rn-222 в тях намалява експоненциално с периода на полуразпадане на радона. Съдовете са без включен постоянен източник на облъчване и в такъв режим имаме:

$$C_{out}(t) = C_0(t)e^{-\lambda t}$$
(XIII)

## 3.2. Експеримент 2 – Черенково и течно-сцинтилационно броене

За осъществяването на експеримента първо ще приготвим два съда с активност на Rn-222 - барботьор с обем  $V_b = 0,35$  L и ексикатор с обем  $V_{ex} = 6,37$  L. На *фиг. 3.* е показана *система 2* за целта. Помпата работи 10 min за хомогенизиране активността от източника (използван в *Експеримент 1*) в цялата система. От последното продухване на източника до момента на свързване и пускане на *система 2* са изминали 172,14 h. Използвайки формула (XI), активността към конкретния момент на пускане на системата е  $A_{source} = 76031,25$  Bq. Обемът на *система 2* от *фиг. 13* е:  $V_{syst}^{(2)} = V_{source} + V_b + V_{ex} = 6,92$  L.



Фигура 3. Схема на експерименталната установка - система 2

Активността в барботьора е пресметната като: 
$$A_b = \frac{V_b}{V_{syst}^{(2)}} A_{source} = 3845,5 \text{ Bq}$$

Активността в барботьора ще използваме, за да облъчим гранули от *система 3* показана на *фиг. 4*. Тя се състои се от перисталтична помпа, барботьора с

предварително подготвената активност на Rn-222, 5 херметичнни съда и ексикатор, съдържащи поликарбонатни гранули, радонов монитор RAD7 за следене на обемната концентрация в системата. Помпата служи за хомогенизиране на активността от барботьора в обема на цялата свързана система, осигурявайки среда с радон, в която гранулите ще се облъчват. Системата е без постоянен източник т.е. имаме режим на експоненциално намаляваща активност на радон:  $C_{out}(t) = C_0(t)e^{-\lambda t}$ . Обемът на *система 3* е  $V_{syst}^{(3)} = 11,12$  L. Очакваната обемна активност в системата ще бъде:  $A_v = \frac{A_b}{V_{syst}^{(3)}} = 345,8$  kBq/m<sup>3</sup>. След хомогенизирането на системата измерената от RAD7

обемна активност е  $A_V = 319, 2$  kBq/m<sup>3</sup>. Разликата между теоретично пресметната и реално измерената от RAD7 е приблизително 8%, което може да се обясни с неточно определяне на обема в системата или с нехерметичност на системата.

След хомогенизирането на активността, помпата се спира и системата се разкача, като съдовете и ексикатора с гранули остават херметично затворени. Активността на Rn-222 в тях намалява експоненциално с периода на полуразпадане на радона. Съдовете са без включен постоянен източник на радон и в такъв режим имаме:

$$C_{out}(t) = C_0(t)e^{-\lambda t}$$
(XIII)

Фигура 4. Схема на експерименталната установка - система 3

## 4. Резултати

#### 4.1. Резултати от сорбция на поликарбонатни гранули

За проследяването на процеса на сорбция при двата експеримента, последва отварянето на съдовете с поликарбонати през определени интервали. От всеки съд се вземат 15g гранули и се поставят в шишенца, затворени без течно-сцинтилационен коктейл за Черенково измерване или с течно-сцинтилационен коктейл, в случай на течно-сцинтилационно измерване на спектрометъра RackBeta 1219 LS. Резултатите от измерванията са представени и описани графично и таблично по-долу в дипломната работа. Измерените скорости на броене са коригирани за фон, което дефинираме като

чиста скорост на броене: 
$$\mathbf{n}_0 = \mathbf{n} - \mathbf{n}_{bg}$$
, с неопределеност:  $\mathbf{\sigma}_{\mathbf{n}0} = \sqrt{\frac{n + n_{bg}}{t_{dur_meas}}}$ 

За Черенково измерване фона е:  $\mathbf{n}_{bg} = 26,00 \pm 0,55$  срт [23]

За течно-сцинтилационно измерване фона е:  $\mathbf{n}_{bg} = 80,00 \pm 0,61$  срт [23]

На графиките ( $\phi uz.5-15$ ) са показани зависимостта на логаритъм от чистата скорост на броене  $\ln(\mathbf{n}_0)$  от времето. Частите, маркирани с червени точки на графиките обхващат времето за достигане на равновесие на Rn-222 със неговите КПР и разпадне на "plateout"-а, което е между 3 и 4 h, когато сигнала от КПР е сравним с този от радона. За случаите когато сигнала от КПР е по-голям от радоновия, времето е повече от 4h. В този интервал сигнала е доминиран от "plateout"-а. Частите от графиките след разпадането на "plateout"-а (с черни точки) са апроксимирани с права, за да се оцени скоростта на броене към момента на затваряне на гранулите в шишенцата, като по този начин се елиминира влиянието на "plateout"-а. От уравнението на правата намираме чистата скоростта на броене  $\mathbf{n}_0$  в началният момент на измерването. Знаейки нея можем да пресметнем каква е била абсорбираната активност в облъчените поликарбонати  $A_{PC}$  в началния момент на измерването  $\mathbf{t}_{meas} = \mathbf{0}$  т.е. в момента на прекратяване на сорбцията:

$$A_{PC} = \frac{n_0}{\varepsilon} \tag{XIV}$$

19

$$\sigma_{A_{PC}} = A_{PC} \sqrt{\frac{\left(\sigma_{n_0}\right)^2}{(n_0)^2} + \frac{(\sigma_{\varepsilon})^2}{(\varepsilon)^2}}$$
(XV)

като във формули (XIV) и (XV) ефективността на спектрометъра RackBeta 1219 LS е:

- при Черенково броене: ε<sub>cher</sub> = 1,18 ± 0,118 [23]
- при течно-сцинтилационно броене:  $\varepsilon_{LSC} = 4,56 \pm 0,18$  [23]

Написаното горе е приложено за всички съдове от двата експеримента.

#### 4.1.1. Резултати от Експеримент 1

Херметичен съд №1:	$m_{\rm mumerue} = 5.2  {\rm g}$ ,	$\mathbf{m}_{\text{гранули}} + \mathbf{m}_{\text{шишение}} = 20,2$
Асристичси свд лет.	$m_{\rm шишенце} - 3,2 g$ ,	ппранули ппшишенце – 20,2

Начало на облъчване	11.06.2013 - 10:49 h
Край на облъчване	11.06.2013 - 13:04 h
Време на сорбция	$t_{sorp} = 2,25 h$
Отваряне на съда	11.06.2013 - 13:04 h
Затваряне в шишенце за измерване	13:07 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	11.06.2013 - 13:18 h



 $t_{meas} = 0:$   $ln(n_0) = 4,719 \pm 0.0188 \text{ cpm} \implies$   $exp(ln(n_0)) = n_0 = 112,15 \text{ cpm}$   $\sigma_{n0} = 0,0188.n_0 = 2,11 \text{ cpm}$ 

Фигура 5. ln(n<sub>0</sub>) като функция на времето от гранули от съд №1 (Черенково)

Начало на облъчване	11.06.2013 - 10:49 h
Край на облъчване	11.06.2013 - 15:57 h
Време на сорбция	$t_{sorp} = 5,13(3) h$
Отваряне на съда	11.06.2013 - 15:57 h
Затваряне в шишенце за измерване	16:00 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	11.06.2013 - 18:19 h

## <u>Херметичен съд №2</u>: $m_{\text{шишенце}} = 5,175 \text{ g}$ , $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,164 \text{ g}$



t <sub>meas</sub>	=	0:
•meas		· · ·

 $ln(\mathbf{n}_{0}) = 5,09532 \pm 0,01481 \text{ cpm} \implies \\ exp(ln(\mathbf{n}_{0})) = \mathbf{n}_{0} = 163,26 \text{ cpm}, \\ \boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{n}0} = 0,01481.\mathbf{n}_{0} = 2,42 \text{ cpm}$ 

Фигура 6. ln(n<sub>0</sub>) като функция на времето от гранули от съд №2 (Черенково)

## <u>Херметичен съд №3</u>: m<sub>шишенце</sub> = 5,199 g , m<sub>гранули</sub> + m<sub>шишенце</sub> = 20,204 g

Начало на облъчване	11.06.2013 - 10:49 h
Край на облъчване	11.06.2013 - 18:59 h
Време на сорбция	$t_{sorp} = 8,16(6) h$
Отваряне на съда	11.06.2013 - 18:59 h
Затваряне в шишенце за измерване	19:01 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	11.06.2013 - 19:09 h



 $\mathbf{t}_{\text{meas}} = 0$ :

 $ln(\mathbf{n}_0) = 5,3348 \pm 0,0234 \text{ cpm} \implies => \\ exp(ln(\mathbf{n}_0)) = \mathbf{n}_0 = 207,45 \text{ cpm} \\ \boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{n}0} = 0,0234.\mathbf{n}_0 = 4,84 \text{ cpm} \end{cases}$ 

Фигура 7. ln(n₀) като функция на времето от гранули от съд №3 (Черенково)

Начало на облъчване	11.06.2013 - 10:49 h
Край на облъчване	12.06.2013 - 10:34 h
Време на сорбция	t <sub>sorp</sub> = 23,75 h
Отваряне на съда	12.06.2013 - 10:34 h
Затваряне в шишенце за измерване	10:37 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	12.06.2013 - 10:42 h

## <u>Херметичен съд №4</u>: m<sub>шишенце</sub> = 5,230 g , m<sub>гранули</sub> + m<sub>шишенце</sub> = 20,229 g



t <sub>meas</sub>	=	0	
•mcas		~	1

 $ln(n_0) = 5{,}700 \ \pm 0{,}00608 \ cpm \quad =>$ 

 $\exp(\ln(n_0)) = n_0 = 299,02 \text{ cpm}$  $\sigma_{n0} = 0,00608.n_0 = 1,82 \text{ cpm}$ 



## <u>Херметичен съд №5</u>: $m_{\text{шишенце}} = 5,293 \text{ g}$ , $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,300 \text{ g}$

Начало на облъчване	11.06.2013 - 10:49 h
Край на облъчване	13.06.2013 - 10:37 h
Време на сорбция	t <sub>sorp</sub> = 47,8 h
Отваряне на съда	13.06.2013 - 10:37 h
Затваряне в шишенце за измерване	10:42 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	13.06.2013 - 10:48 h
$\begin{bmatrix} e_{1}, e_{2}, e_{3}, e_{4}, e_{5}, e_{5}, e_{6}, e_{6}, e_{7}, e_{7}$	$t_{meas} = 0:$ $ln(n_0) = 5,728 \pm 0,0828 \text{ cpm} \implies =>$ $exp(ln(n_0)) = n_0 = 307,49 \text{ cpm}$ $\sigma_{n0} = 0,0828.n_0 = 2,55 \text{ cpm}$
t (h)	

Фигура 9. ln(n<sub>0</sub>) като функция на времето от гранули от съд №5 (Черенково)

## 4.1.2. Резултати от Експеримент 2

Отваряме едновременно съд №1 и №2, за да сравним сигналите от облъчените гранули от №1, с тези от №2, и да проверим херметичността на еднаквите съдовете.

## Херметичен съд №1:

## Черенково: $m_{\text{шишенце}} = 5,227 \text{ g}$ , $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,227 \text{ g}$

Начало на облъчване	17.06.2013 - 18:00 h
Край на облъчване	18.06.2013 - 10:38 h
Време на сорбция	$\mathbf{t}_{sorp} = 16,63 \mathbf{h}$
Отваряне на съда	18.06.2013 - 10:38 h
Затваряне в шишенце за измерване	10:44 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	18.06.2013 - 11:22 h

## Течно-сцинтилационно: $m_{\text{шишенце}} = 5,298 \text{ g}$ , $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,291 \text{ g}$

Начало на облъчване	17.06.2013 - 18:00 h
Край на облъчване	18.06.2013 - 10:38 h
Време на сорбция	$t_{sorp} = 16,63 h$
Отваряне на съда	18.06.2013 - 10:38 h
Затваряне в шишенце за измерване	10:41 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	18.06.2013 - 11:22 h



 $\begin{aligned} \mathbf{t_{meas}} &= \mathbf{0}: \\ &\ln(\mathbf{n_0}) = 7,24328 \pm 0,00836 \text{ cpm } => \\ &\exp(\ln(\mathbf{n_0})) = \mathbf{n_0} = 1398,67 \text{ cpm} \\ &\sigma_{\mathbf{n}0} = 0,00836.\mathbf{n_0} = 11,69 \text{ cpm} \end{aligned}$ 

Фигура 10. ln(n<sub>0</sub>) като функция на времето от гранули от съд №1 (LSC)

## <u>Херметичен съд №2</u>:

Черенково:	$m_{\text{шишение}} = 5,171 \text{ g}$ ,	<b>m<sub>гранули</sub> + m</b> шишен	ue = 20,174 g
------------	--	--------------------------------------	---------------

Начало на облъчване	17.06.2013 - 18:00 h
Край на облъчване	18.06.2013 - 10:48 h
Време на сорбция	$t_{sorp} = 16,63 h$
Отваряне на съда	18.06.2013 - 10:38 h
Затваряне в шишенце за измерване	10:48 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	18.06.2013 - 11:22 h



Фигура 11. ln(n₀) като функция на времето от гранули от съд №1 и от съд №2 (Черенково)

$\mathbf{t}_{\mathrm{meas}} = 0$ :	
съд №1:	$ln(\mathbf{n_0}) = 5,92449 \pm 0,01094 \text{ cpm} \implies$
съд №2:	$exp(ln(\mathbf{n}_0)) = \mathbf{n}_0 = 374,09 \text{ cpm}$ $\sigma_{\mathbf{n}0} = 0,01094.\mathbf{n}_0 = 4,09 \text{ cpm}$ $ln(\mathbf{n}_0) = 5,88059 \pm 0,01318 \text{ cpm} \implies$
	$exp(ln(\mathbf{n_0})) = \mathbf{n_0} = 358,02 \text{ cpm}$ $\sigma_{\mathbf{n0}} = 0,01318.\mathbf{n_0} = 4,72 \text{ cpm}$

## Херметичен съд №3:

## Черенково: $m_{\text{шишенце}} = 5,199 \text{ g}$ , $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,191 \text{ g}$

Начало на облъчване	17.06.2013 - 18:00 h
Край на облъчване	19.06.2013 - 09:50 h
Време на сорбция	$t_{sorp} = 39,83 h$
Отваряне на съда	19.06.2013 - 09:50 h
Затваряне в шишенце за измерване	09:57 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	18.06.2013 - 10:02 h

# Течно-сцинтилационно: $m_{\text{шишенце}} = 5,311 \text{ g}$ , $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,308 \text{ g}$

Начало на облъчване	17.06.2013 - 18:00 h
Край на облъчване	18.06.2013 - 10:41 h
Време на сорбция	t <sub>sorp</sub> = 39,83 h
Отваряне на съда	18.06.2013 - 10:41 h
Затваряне в шишенце за измерване	09:55 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	18.06.2013 - 11:22 h



Фигура 12. ln(n<sub>0</sub>) като функция на времето от гранули от съд №3 (LSC)

## <u>Херметичен съд №4</u>:

# Черенково: $m_{\text{шишенце}} = 5,229 \text{ g}$ , $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,228 \text{ g}$

Начало на облъчване	17.06.2013 - 18:00 h
Край на облъчване	21.06.2013 - 12:46 h
Време на сорбция	t <sub>sorp</sub> = 90,76 h
Отваряне на съда	21.06.2013 - 12:46 h
Затваряне в шишенце за измерване	12:56 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	21.06.2013 - 13:58 h

# Течно-сцинтилационно: $m_{\text{шишенце}} = 5,250 \text{ g}$ , $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,260 \text{ g}$

Начало на облъчване	17.06.2013 - 18:00 h
Край на облъчване	21.06.2013 - 12:46 h
Време на сорбция	t <sub>sorp</sub> = 90,76 h
Отваряне на съда	21.06.2013 - 12:46 h
Затваряне в шишенце за измерване	12:52 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	21.06.2013 - 13:58 h

Черенково:  $n_0 = 437,7$  срт,  $\sigma_{n0} = 4,9$  срт

**LSC:**  $\mathbf{n_0} = 1732,4 \text{ cpm}, \ \mathbf{\sigma_{n0}} = 9,7 \text{ cpm}$ 

## <u>Херметичен съд №5</u>:

# Черенково: $m_{\text{шишенце}} = 5,204 \text{ g}$ , $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,194 \text{ g}$

Начало на облъчване	17.06.2013 - 18:00 h
Край на облъчване	26.06.2013 - 11:40 h
Време на сорбция	t <sub>sorp</sub> = 209,66 h
Отваряне на съда	26.06.2013 - 11:40 h
Затваряне в шишенце за измерване	11:43 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	26.06.2013 - 12:00 h



Фигура 13. ln(n<sub>0</sub>) като функция на времето от гранули от съд №5 (Черенково)

$$\begin{split} \mathbf{t_{meas}} &= \mathbf{0}: \\ &\ln(\mathbf{n_0}) = 5,70792 \ \pm 0,01732 \ \text{cpm} \quad => \\ &\exp(\ln(\mathbf{n_0})) = \ \mathbf{n_0} = \ 301,24 \ \text{cpm} \\ &\mathbf{\sigma_{n0}} = 0,01732.\mathbf{n_0} = 5,22 \ \text{cpm} \end{split}$$

#### <u>Ексикатор</u>:

## Черенково: $m_{\text{шишенце}} = 5,251 \text{ g}$ , $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,251 \text{ g}$

Начало на облъчване	17.06.2013 - 18:00 h
Край на облъчване	26.06.2013 - 11:38 h
Време на сорбция	t <sub>sorp</sub> = 209,66 h
Отваряне на съда	26.06.2013 - 11:38 h
Затваряне в шишенце за измерване	11:40 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	26.06.2013 - 12:00 h
6.9	



 $t_{meas} = 0:$   $ln(n_0) = 5,75476 \pm 0,01495 \text{ cpm}$  =>  $exp(ln(n_0)) = n_0 = 315,69 \text{ cpm}$  $\sigma_{n0} = 0,01495.n_0 = 4,72 \text{ cpm}$ 

**Фигура 14.**  $ln(n_0)$  като функция на времето от гранули от Ексикатор (Черенково)

Черенково:  $m_{\text{шишенце}} = 5,187 \text{ g}$ ,  $m_{\text{гранули}} + m_{\text{шишенце}} = 20,186 \text{ g}$ 

Начало на облъчване	17.06.2013 - 18:00 h
Край на облъчване	26.06.2013 - 11:38 h
Време на сорбция	t <sub>sorp</sub> = 209,66 h
Отваряне на съда	26.06.2013 - 11:38 h
Затваряне в шишенце за измерване	16:31 h
Начало на измерване от RackBeta 1219 LS	26.06.2013 - 16:31 h



 $t_{meas} = 0$ :

 $\ln(\mathbf{n_0}) = 5,629 \pm 0,01422 \text{ cpm} \implies$ 

$$\exp(\ln(\mathbf{n_0})) = \mathbf{n_0} = 278,38 \text{ cpm}$$
  
 $\sigma_{\mathbf{n0}} = 0,01422.\mathbf{n_0} = 3,96 \text{ cpm}$ 

**Фигура 15.**  $ln(n_0)$  като функция на времето от гранули от Ексикатор (Черенково)

## 4.2. Резултати от десорбция на поликарбонатни гранули

За проследяването на активността в облъчените поликарбонатни гранули при процеса на десорбция се взимат от херметичните съдове други 15g гранули, които се затварят в шишенце и се пускат за еднократно измерване на спектрометъра в режим на Черенково броене. След това гранулите се изваждат от шишенцето и се оставят да десорбират на открито. След известно време, гранулите отново се поставят в шишенце, измерват се еднократно и отново се оставят да десорбират. Процедурата се повтаря през определени интервали време докато скоростта на броене стане сравнима с фоновата скорост на броене. Времената на измерване са много по-малки в сравнение с характерното време на десорбция, затова може да считаме, че затварянето в шишенца не влияе съществено на процесите на сорбция и десорбция. Резултатите от измерените скорости на броене и пресметната активност в гранулите са представени таблично и графично по-долу (*фиг. 16-18, табл. 2-8*). При пресмятанията се процедира аналогично, както е описано в "*Резултати от сорбция на поликарбонатни гранули*".

T⁰C	13.06.13 -10:37h open	т <sub>шише+гранули</sub> (g)	t <sub>start_shift</sub> (h)	t <sub>dur</sub> <sup>meas</sup> (S)	N (cpm)	σ <sub>n</sub> (cpm)	t <sub>meas</sub> (h)	N <sub>0</sub> (cpm)	σ <sub>n0</sub> (cpm)
23 <sup>0</sup>	13.06.13 - 11:58h	20,296	1,35	300	411,08	9,07	1,35	385,08	9,35
23 <sup>0</sup>	13.06.13 - 13:30h	20,294	2,88	300	294,29	7,67	2,88	268,29	8,00
23 <sup>0</sup>	13.06.13 - 15:07h	20,306	4,50	300	266,99	7,31	4,50	240,99	7,65
23 <sup>0</sup>	13.06.13 - 16:47h	20,298	6,17	300	254,25	7,13	6,17	228,25	7,49
23 <sup>0</sup>	13.06.13 - 18:08h	20,297	7,52	300	236,23	6,87	7,52	210,23	7,24
23 <sup>0</sup>	13.06.13 - 19:13h	20,297	8,60	300	241,49	6,95	8,60	215,49	7,31
23 <sup>0</sup>	14.06.13 - 09:16h	20,305	22,65	600	165,27	4,07	22,65	139,27	4,37
24 <sup>0</sup>	14.06.13 - 11:32h	20,305	24,92	600	168,5	4,10	24,92	142,5	4,41
24 <sup>0</sup>	14.06.13 - 13:42h	20,298	27,08	600	163,04	4,04	27,08	137,04	4,35
24 <sup>0</sup>	14.06.13 - 16:03h	20,304	29,43	600	150,48	3,88	29,43	124,48	4,20
24 <sup>0</sup>	14.06.13 - 18:02h	20,294	31,42	600	147,13	3,84	31,42	121,13	4,16
25 <sup>0</sup>	15.06.13 - 11:25h	20,305	48,80	900	112,05	2,73	48,80	86,05	3,03
26 <sup>0</sup>	16.06.13 - 11:10h	20,299	72,55	900	88,22	2,43	72,55	62,22	2,76
25 <sup>0</sup>	17.06.13 - 13:07h	20,300	98,50	1200	72,43	1,90	98,50	46,43	2,22

#### 4.2.1. Резултати от Експеримент 1

**Таблица 2.** Стойности за чистата скорост на броене  $\mathbf{n}_0$  (Черенково) при десорбцията на 15g гранули от херметичен съд №5 от *Експеримент 1* 

13.06.13 -10:37h open	тинше+гранули (g)	t <sub>des</sub> (h)	n <sub>0</sub> (cpm)	$\sigma_{n0}~(\text{cpm})$	$t_{des} + t_{sorp}$ (h)	A <sub>(15g)</sub> (Bq)	<b>σ</b> <sub>A(15g)</sub> (Bq)	T°C
13.06.13 - 11:58h	20,296	1,35	385,08	9,35	49,15	5,44	0,56	23°
13.06.13 - 13:30h	20,294	2,88	268,29	8,00	50,68	3,79	0,40	23°
13.06.13 - 15:07h	20,306	4,50	240,99	7,65	52,30	3,40	0,36	23°
13.06.13 - 16:47h	20,298	6,17	228,25	7,49	53,97	3,22	0,34	23°
13.06.13 - 18:08h	20,297	7,52	210,23	7,24	55,32	2,97	0,31	23°
13.06.13 - 19:13h	20,297	8,60	215,49	7,31	56,40	3,04	0,32	23°
14.06.13 - 09:16h	20,305	22,65	139,27	4,37	70,45	1,97	0,21	23°
14.06.13 - 11:32h	20,305	24,92	142,50	4,41	72,72	2,01	0,21	24 <sup>°</sup>
14.06.13 - 13:42h	20,298	27,08	137,04	4,35	74,88	1,94	0,20	24 <sup>°</sup>
14.06.13 - 16:03h	20,304	29,43	124,48	4,20	77,23	1,76	0,19	24 <sup>°</sup>
14.06.13 - 18:02h	20,294	31,42	121,13	4,16	79,22	1,71	0,18	24 <sup>°</sup>
15.06.13 - 11:25h	20,305	48,80	86,05	3,03	96,60	1,22	0,13	25°
16.06.13 - 11:10h	20,299	72,55	62,22	2,76	120,35	0,88	0,10	26°
17.06.13 - 13:07h	20,3	98,50	46,43	2,22	146,30	0,66	0,07	25°

В *табл.* 2.  $t_{meas}$  е всъщност времето на десорбция на гранулите  $t_{des:}$   $t_{meas} = t_{des}$ , а в *табл.* 3. -  $t_{meas} = t_{sorp} + t_{des}$ .

Таблица 3. Резултати за активността при десорбцията на 15g гранули от херм. съд №5 от *Експеримент 1* 



Фигура 16. Изменението на активността с времето при десорбция на 15g гранули от херметичен съд №5 от *Експеримент 1* 

4.2.2.	Резултати	от Експеримент	2
--------	-----------	----------------	---

T⁰C	18.06.13 -10:38h open	тинше+гранули (g)	t <sub>start_shift</sub> (h)	t <sub>dur</sub> <sup>meas</sup> (s)	n (cpm)	σ <sub>n</sub> (cpm)	t <sub>meas</sub> (h)	n <sub>0</sub> (cpm)	σ <sub>n0</sub> (cpm)
25°	18.06.13 - 11:08h	20,238	0,5	300	867,52	13,17	0,5	841,52	13,37
26°	18.06.13 - 13:08h	20,238	2,5	300	355,22	8,43	2,5	329,22	8,73
25°	18.06.13 - 15:23h	20,238	4,75	300	262,53	7,25	4,75	236,53	7,60
26°	18.06.13 - 17:18h	20,238	6,67	300	224,29	6,7	6,67	198,29	7,08
25°	18.06.13 - 18:43h	20,238	8,08	300	215,59	6,57	8,08	189,59	6,95
26°	19.06.13 - 09:45h	20,238	23,12	600	146,82	3,83	23,12	120,82	4,16
26 <sup>°</sup>	19.06.13 - 12:25h	20,238	25,78	600	144,71	3,8	25,78	118,71	4,13
26°	19.06.13 - 15:06h	20,238	28,47	600	130,83	3,62	28,47	104,83	3,96
26°	19.06.13 - 17:22h	20,238	30,73	600	126,67	3,56	30,73	100,67	3,91
26 <sup>°</sup>	19.06.13 - 19:19h	20,238	32,68	600	121,1	3,48	32,68	95,1	3,84
27°	20.06.13 - 10:56h	20,238	48,3	900	98,02	2,56	48,3	72,02	2,88
26°	20.06.13 - 13:39h	20,238	53,12	1200	97,8	2,21	53,12	71,8	2,49
26°	20.06.13 - 15:45h	20,238	51,02	1200	96	2,19	51,02	70	2,47
26°	21.06.13 - 13:06h	20,238	74,47	1800	68,53	1,51	74,47	42,53	1,77

Таблица 4. Данни от десорбцията на 15g гранули от съд №2 от *Експеримент 2* 

18.06.13 -10:38h open	т <sub>шише+гранули</sub> (g)	t <sub>des</sub> (h)	n <sub>0</sub> (cpm)	$\sigma_{n0}~(\text{cpm})$	$t_{des} + t_{sorp}$ (h)	A <sub>(15g)</sub> (Bq)	$\sigma_{A(15g)}\left(Bq\right)$	T⁰C
18.06.13 - 11:08h	20,238	0,50	841,52	13,37	17,13	11,89	1,20	25°
18.06.13 - 13:08h	20,238	2,50	329,22	8,73	19,13	4,65	0,48	26°
18.06.13 - 15:23h	20,238	4,75	236,53	7,60	21,38	3,34	0,35	25°
18.06.13 - 17:18h	20,238	6,67	198,29	7,08	23,3	2,80	0,30	26°
18.06.13 - 18:43h	20,238	8,08	189,59	6,95	24,72	2,68	0,29	25°
19.06.13 - 09:45h	20,238	23,12	120,82	4,16	39,75	1,71	0,18	26°
19.06.13 - 12:25h	20,238	25,78	118,71	4,13	42,42	1,68	0,18	26°
19.06.13 - 15:06h	20,238	28,47	104,83	3,96	45,1	1,48	0,16	26°
19.06.13 - 17:22h	20,238	30,73	100,67	3,91	47,37	1,42	0,15	26°
19.06.13 - 19:19h	20,238	32,68	95,10	3,84	49,32	1,34	0,14	26°
20.06.13 - 10:56h	20,238	48,30	72,02	2,88	64,93	1,02	0,11	27°
20.06.13 - 13:39h	20,238	51,02	71,80	2,49	67,65	1,01	0,11	26°
20.06.13 - 15:45h	20,238	53,12	70,00	2,47	69,75	1,01	0,11	26°
21.06.13 - 13:06h	20,238	74,47	42,53	1,77	91,1	0,60	0,06	26°

Таблица 5. Резултати за активността при десорбцията на 15g гранули от съд №2 от *Експеримент 2* 

T⁰C	26.06.13 - 11:40h open	тинше+гранули (g)	t <sub>start_shift</sub> (h)	t <sub>dur</sub> <sup>meas</sup> (s)	n (cpm)	σ <sub>n</sub> (cpm)	t <sub>meas</sub> (h)	n <sub>0</sub> (cpm)	$\sigma_{n0}$ (cpm)
26	26.06.13 - 11:49h	20,194	0,15	300	383,35	8,76	0,15	357,35	9,05
26	26.06.13 - 13:26h	20,194	1,77	300	294,72	7,68	1,77	268,72	8,01
26	26.06.13 - 15:35h	20,194	3,92	300	256,06	7,16	3,92	230,06	7,51
26	26.06.13 - 17:36h	20,194	5,93	600	237,8	4,88	5,93	211,8	5,14
24	27.06.13 - 11:52h	20,194	24,2	1200	183,63	3,03	24,2	157,63	3,24
23	27.06.13 - 14:03h	20,194	26,38	600	188,47	4,34	26,38	162,47	4,63
24	27.06.13 - 16:58h	20,194	29,3	600	177,82	4,22	29,3	151,82	4,51
24	28.06.13 - 10:24h	20,194	46,73	1200	146,83	2,71	46,73	120,83	2,94
24	28.06.13 - 14:24h	20,194	50,73	1200	141,21	2,66	50,73	115,21	2,89
24	28.06.13 - 17:10h	20,194	53,5	1200	136,55	2,61	53,5	110,55	2,85
23	01.07.13 - 10:09h	20,194	118,48	1200	83,12	2,04	118,48	57,12	2,34

Таблица 6. Данни от десорбцията на 15g гранули от съд №5 от *Експеримент 2* 

26.06.13 - 11:40h open	т <sub>шише+гранули</sub> (g)	t <sub>des</sub> (h)	n <sub>0</sub> (cpm)	σ <sub>n0</sub> (cpm)	$\mathbf{t}_{des} + \mathbf{t}_{sorp} \left( \mathbf{h} \right)$	A <sub>(15g)</sub> (Bq)	σ <sub>A(15g)</sub> (Bq)	T°C
26.06.13 - 11:49h	20,194	0,15	357,35	9,05	209,81	5,05	0,52	25°
26.06.13 - 13:26h	20,194	1,77	268,72	8,01	211,43	3,80	0,40	26°
26.06.13 - 15:35h	20,194	3,92	230,06	7,51	213,58	3,25	0,34	25°
26.06.13 - 17:36h	20,194	5,93	211,8	5,14	215,59	2,99	0,31	26 <sup>°</sup>
27.06.13 - 11:52h	20,194	24,20	157,63	3,24	233,86	2,23	0,23	25°
27.06.13 - 14:03h	20,194	26,38	162,47	4,63	236,04	2,29	0,24	26°
27.06.13 - 16:58h	20,194	29,30	151,82	4,51	238,96	2,14	0,22	26°
28.06.13 - 10:24h	20,194	46,73	120,83	2,94	256,39	1,71	0,18	26°
28.06.13 - 14:24h	20,194	50,73	115,21	2,89	260,39	1,63	0,17	26 <sup>°</sup>
28.06.13 - 17:10h	20,194	53,50	110,55	2,85	263,16	1,56	0,16	26°
01.07.13 - 10:09h	20,194	118,48	57,12	2,34	328,14	0,81	0,09	27°

Таблица 7. Резултати за активността при десорбцията на 15g гранули от съд №5 от *Експеримент 2* 



Фигура 17. Изменението на активността на 15g гранули от момента на отварянето на херметичен съд №2 от *Експеримент 2*, във времето, при процеса на десорбция



Фигура 18. Изменението на активността на 15g гранули от момента на отварянето на херметичен съд №5 от *Експеримент 2*, във времето, при процеса на десорбция

Данните за активността в 15g гранули от херметичните съдове от *Експеримент 1* са обощени в *табл. 7.*, а от *Експеримент 2* в *табл. 8*.

	t (h)	n <sub>0</sub> (cpm)	$\sigma_{n0}$ (cpm)	A <sub>(15g)</sub> (Bq)	$\sigma_{A(15g)}~(Bq)$
	2,25	112,15	2,11	1,58	0,16
8	5,13	163,26	2,42	2,31	0,23
РБЦ	8,17	207,45	4,85	2,93	0,30
Ы	23,75	299,02	1,82	4,22	0,42
	47,80	307,49	2,55	4,34	0,44
	49,15	385,08	9,35	5,44	0,54
	50,68	268,29	8,00	3,79	0,38
	52,30	240,99	7,65	3,40	0,34
	53,97	228,25	7,49	3,22	0,32
	55,32	210,23	7,24	2,97	0,30
ДE	56,40	215,49	7,31	3,04	0,30
õ	70,45	139,27	4,37	1,97	0,20
БЦ	72,72	142,50	4,41	2,01	0,20
ЪЧ	74,88	137,04	4,35	1,94	0,19
	77,23	124,48	4,20	1,76	0,18
	79,22	121,13	4,16	1,71	0,17
	96,60	86,05	3,03	1,22	0,12
	120,35	62,22	2,76	0,88	0,09
	146,30	46,43	2,22	0,66	0,07

**Таблица 7.** Експериментални данни за 15g гранули от петте херметични съда от *Експеримент 1* 

	t (h)	n <sub>0</sub> (cpm)	$\sigma_{n0}~(cpm)$	$A_{(15g)} \ (Bq)$	$\sigma_{A(15g)} \left( Bq \right)$
	16,6	710,3	6,6	5,15	0,25
20	39,8	1117,7	10,4	6,54	0,36
)PE	90,8	1085,0	7,3	6,26	0,34
	209,7	301,2	5,2	4,25	0,43
	209,82	357,35	9,05	5,05	0,52
	211,43	268,72	8,01	3,80	0,40
	213,58	230,06	7,51	3,25	0,34
Д	215,60	211,80	5,14	2,99	0,31
ECC	233,87	157,63	3,24	2,23	0,23
OPE	236,05	162,47	4,63	2,29	0,24
ЦŊ	238,97	151,82	4,51	2,14	0,22
л	256,40	120,83	2,94	1,71	0,18
	260,40	115,21	2,89	1,63	0,17
	263,17	110,55	2,85	1,56	0,16
	328,15	57,12	2,34	0,81	0,09
	17,13	841,52	1,73	11,89	1,19
	19,13	329,22	1,13	4,65	0,47
	21,38	236,53	0,98	3,34	0,33
	23,30	198,29	0,91	2,80	0,28
	24,72	189,59	0,90	2,68	0,27
ДE	39,75	120,82	0,54	1,71	0,17
OP	42,42	118,71	0,53	1,68	0,17
ъЕЦ	45,10	104,83	0,51	1,48	0,15
ВИ	47,37	100,67	0,50	1,42	0,14
	49,32	95,10	0,50	1,34	0,13
	64,93	72,02	0,37	1,02	0,10
	67,65	71,80	0,32	1,01	0,10
	69,75	71,80	0,32	1,01	0,10
	91,10	42,53	0,23	0,60	0,06

**Таблица 8.** Експериментални данни за 15g гранули от петте херметични съда и ексикатора от *Експеримент 2* 

### 4.3. Резултати от пресмятанията с компютърният код

Използваме компютърният код за пресмятане на абсорбираната активност от облъчените гранули при конкретните условия от *Експеримент 1 и 2*, след което ще можем да сравним данните от кода с експерименталните при същите условия. За целта задаваме следните параметри за пресмятането от кода:

- Режим на десорбция
- Експоненциално намаляваща обемна активност:  $C(t) = C_0 e^{-\lambda t}$
- Средата на облъчване на гранулите е въздух
- РБГ е Rn-222
- Начална обемна активност (t=0): Av [Bq/m<sup>3</sup>]
- Радиус на гранула: R = 1,49 [mm]
- Височина на гранула: H = 2,65 [mm]
- Маса на гранулите: M = 15 [g]
- Плътност на РС гранули: р = 1,02 [g/cm<sup>3</sup>]
- Разтворимост *К*:
- Дължина на дифузия *L<sub>D</sub>*: µm
- Време на сорбция: Texp [h]
- Време на десорбция: Tdes [h]
- Стойности за сумационните коефициенти k и m: k = m = 2000

Температурната зависимост на дължината на дифузия  $L_D$  и разтворимостта K на РБГ между средата в поликарбонати е показана в [16],[17],[18]. В тях са изведени уравнения за определянето на дължината на дифузия  $L_D$ :

$$L_D = 45,9 - 0,926T + 0,0615T^2 [16]$$

$$L_D = 44,413 - 0,7151T + 0,0554T^2 [17]$$

В тях заместваме T с усреднената температура по време на *Експеримент 1* - T = 25°С и така получаваме  $L_D = 61,17 \ \mu m$ , средно от получените стойности. Тази стойност задаваме в компютърният код при пресмятанията от *Експеримент 1*.

За определянето на коефициента на разтворимост *К*, в [16],[18] е изведено уравнението:

$$K = 17,547 + 0,9129T - 0,0239T^2$$
[16],[18]

В него заместваме T с усреднената температура по време на експеримента -  $T = 25^{\circ}$ С, и за разтворимостта получаваме: K = 25,4, която стойност което задаваме в кода при пресмятанията от *Експеримент 1*.

Поради факта, че температурата по време на *Експеримент 1* е варирала в интервала 23 - 26°С, са пресметнати K и  $L_D$  за T = 23°С, T = 25°С и T = 26°С. Компютърният код е пуснат при същите параметри, като само са променени K и  $L_D$  за съответните три температури. Целта на това е да покажем как зависи активността в гранулите от температурата. Резултатите са показани графично на *фиг. 21*.



**Фигура 21.** Теоретични данни за активността при сорбция и десорбция на 15g гранули от *Експеримент 1* при  $T = 23^{\circ}C$  (червено),  $T = 25^{\circ}C$  (синьо) и  $T = 26^{\circ}C$  (зелено).

При пресмятанията с кода от *Експеримент 2*,  $L_D$  и *К* са пресметнати по същият начин както за *Експеримент 1*. Стойностите са представени в *табл. 9* за съотвените температури. Тъй като по време на *Експеримент 2* температурата е варирала от 23° до 29°С, за пресмятанията кода е пуснат с параметрите описани по-горе за всяка, като за всяка температура са задавани съответните стойности на *К* и  $L_D$ .

Т°С	K	L <sub>D</sub>
23°	25,9006	57,2039
24°	25,6902	59,1305
$25^{\circ}$	25,432	61,175
26°	25,126	63,3344
27°	24,7722	65,6117
29°	23,9212	70,517

Таблица 9. Стойности за К и L<sub>D</sub> при различни температури

## 4.4. Валидиране на компютърният код за гранули

В *табл.* 10. са данните от кода и тези от *Експеримент* 1, като в последната графа е пресметната относителната разлика между експерименталните стойности на активноста в гранулите и стойностите, пресметнати от кода :

$$(A_{exper} - A_{code})/A_{exper}$$
 %

		Код			Експери	имент		(A A)/A
	A <sub>code</sub> (Bq)	σ <sub>Acode</sub> (Bq)	δA <sub>code</sub> %	t (h)	A <sub>(15g)</sub> (Bq)	σ <sub>A(15g)</sub> (Bq)	δΑ %	%
	1,51	0,11	7,01	2,25	1,58	0,16	10	4,8
S	2,24	0,16	6,93	5,13	2,31	0,23	10	3,0
орец	2,76	0,19	6,88	8,17	2,93	0,30	10	5,9
К	4,16	0,28	6,78	23,75	4,22	0,42	10	1,5
	4,89	0,33	6,69	47,80	4,34	0,44	10	-12,6
	3,48	0,23	6,56	52,30	3,40	0,34	10	-2,1
	3,26	0,21	6,54	53,97	3,22	0,32	10	-1,1
	3,11	0,20	6,53	55,32	2,97	0,30	10	-4,7
	3,00	0,20	6,52	56,40	3,04	0,30	10	1,3
H	2,12	0,14	6,41	70,45	1,97	0,20	10	-7,8
C OF	2,03	0,13	6,40	72,72	2,01	0,20	10	-0,6
ъЕЦ	1,94	0,12	6,38	74,88	1,94	0,19	10	-0,3
ВИ	1,86	0,12	6,37	77,23	1,76	0,18	10	-5,6
	1,79	0,11	6,36	79,22	1,71	0,17	10	-4,6
	1,34	0,08	6,27	96,60	1,22	0,12	10	-10,4
	0,96	0,06	6,16	120,35	0,88	0,09	10	-8,9
	0,69	0,04	6,06	146,30	0,66	0,07	10	-5,0

**Таблица 10.** Теоретични и експериментални данни за активността в 15g поликарбонатни гранули при процесите на 47,8h сорбция и 98,5h десорбция. Данните от кода са приведени към моменти от време, за които имаме експериментални стойности. Относителните неопределености на кода  $\delta A_{code}$  [%] са определени като:  $(A_{T=26^{\circ}C} - A_{T=23^{\circ}C})/A_{T=26^{\circ}C}$ . Неопределеността в кода се дължи на неопределеността внесената от температурата и неопределеността внесената от ограничаването на сумите в кода (от сумационните индекси *k* и *m*), като втората е много по-малка от първата.

На *фиг.* 22 графично е показано изменението на активността в 15g поликарбонатни гранули при процесите на сорбция и десорбция от *Експеримент 1*. Кривата в синьо описва данните пресметнати от кода при  $T = 25^{\circ}$ С, а с червени точки са експерименталните данни при  $T = 25^{\circ}$ С. Можем да заключим, че има добро препокриване и кода описва добре процесите, разминакайки се с експерименталните данни в интервала 1-13%.



**Фигура 22.** Експериментални (червени точки) и теоретични данни (синята крива) за активността при сорбция и десорбция на 15g поликарбонатни гранули при  $T = 25^{\circ}C$  от *Експеримент 1* 

В *табл. 11.* и *табл. 12* са данните от кода и тези от *Експеримент 2*, като в последната графа е пресметната относителната разлика между експерименталните стойности на активноста в гранулите и стойностите, пресметнати от кода :

		Код			Експе	римент		(A <sub>exper</sub> - A <sub>code</sub> )/A <sub>exper</sub>
	A <sub>code</sub> (Bq)	σ <sub>Acode</sub> (Bq)	$\delta A_{code}$ %	t (h)	$A_{(15g)}\left( Bq\right)$	$\sigma_{A(15g)}$ (Bq)	δΑ %	%
	5,36	0,23	4,21	16,63	5,15	0,25	5	-4,2
	3,09	0,13	4,09	21,38	3,34	0,33	10	7,5
	2,79	0,11	4,07	23,30	2,80	0,28	10	0,4
	2,61	0,11	4,07	24,72	2,68	0,27	10	2,5
Æ	1,62	0,06	3,97	39,75	1,71	0,17	10	5,2
COL	1,52	0,06	3,96	42,42	1,68	0,17	10	9,5
ъЕЦ	1,43	0,06	3,94	45,10	1,48	0,15	10	3,6
ВИ	1,36	0,05	3,93	47,37	1,42	0,14	10	4,5
	1,30	0,05	3,92	49,32	1,34	0,13	10	2,9
	0,97	0,04	3,86	64,93	1,02	0,10	10	4,2
	0,90	0,03	3,84	69,75	0,99	0,10	10	9,0
	0,65	0,02	3,76	91,10	0,60	0,06	10	-8,5

**Таблица 11.** Теоретични и експериментални данни за активността в 15g поликарбонатни гранули при 16,63h сорбция и 74,47h десорбция от *Експеримент 2*. Данните от кода са приведени към моменти от време, за които имаме експериментални стойности. Относителните неопределености на кода  $\delta A_{code}$  [%] са определени като:  $(A_{T=27^{\circ}C} - A_{T=25^{\circ}C})/A_{T=27^{\circ}C}$ . Неопределеността в кода се дължи на неопределеността внесената от температурата и неопределеността внесената от ограничаването на сумите в кода (от сумационните индекси *k* и *m*), като втората е много по-малка от първата.

		Код			Експер			
	A <sub>code</sub> (Bq)	σ <sub>Acode</sub> (Bq)	$\delta A_{code}$ %	<b>t</b> (h)	A <sub>(15g)</sub> (Bq)	$\sigma_{A(15g)}$ (Bq)	δA %	%
C	5,36	0,64	11,97	16,6	5,15	0,25	5	-4,1
ореция	6,85	0,81	11,76	39,8	6,54	0,36	5	-4,7
	6,80	0,78	11,48	90,8	6,26	0,34	5	-8,7
	3,92	0,43	11,05	209,7	4,25	0,43	10	7,8
	3,32	0,36	10,86	213,58	3,25	0,33	10	-2,1
	3,16	0,34	10,80	215,60	2,99	0,30	10	-5,7
₽	2,31	0,24	10,56	233,87	2,23	0,22	10	-3,9
ECC	2,24	0,24	10,53	236,05	2,29	0,23	10	2,3
OPE	2,15	0,23	10,50	238,97	2,14	0,21	10	-0,3
Ľ,	1,71	0,18	10,33	256,40	1,71	0,17	10	-0,3
LT I	1,63	0,17	10,29	260,40	1,63	0,16	10	-0,1
	1,57	0,16	10,27	263,17	1,56	0,16	10	-0,9
	0,77	0,08	9,79	328,15	0,81	0,08	10	5,0

**Таблица 12.** Теоретични и експериментални данни за активността в 15g поликарбонатни гранули при 209,7h сорбция и 118,5h десорбция от *Експеримент 2*. Данните от кода са приведени към моменти от време, за които имаме експериментални стойности. Относителните неопределености на кода  $\delta A_{code}$  [%] са определени като:  $(A_{T=29^{\circ}C} - A_{T=23^{\circ}C})/A_{T=29^{\circ}C}$ . Неопределеността в кода се дължи на неопределеността внесената от температурата и неопределеността внесената от ограничаването на сумите в кода (от сумационните индекси *k* и *m*), като втората е много по-малка от първата.

На *фиг. 23* графично е показано изменението на активността в 15g поликарбонатни гранули при процеса на десорбция от *Експеримент 2*. Кривата представлява данните пресметнати от кода при  $T = 26^{\circ}$ С, а с точки са експерименталните данни при  $T = 26^{\circ}$ С. Можем да заключим, че има добро препокриване и кода описва добре процеса на десорбция, разминакайки се с експерименталните данни в интервала 1-10%.



**Фигура 23.** Експериментални (червено точки) и теоретични данни (крива) за активността при десорбция на 15g поликарбонатни гранули при T = 26°C от *Експеримент 2* 

На *фиг.* 24 графично е показано изменението на активността в 15g поликарбонатни гранули при процеса на сорбция и десорбция. Кривата преставлява данните пресметнати от кода при  $T = 26^{\circ}$ C, а с червено са експерименталните данни при  $T = 26^{\circ}$ C. Можем да заключим, че има добро препокриване и кода описва добре процесите на сорбция и десорбция, с разлика от 1-8%.



**Фигура 24.** Експериментални (червено точки) данни за  $T = 26^{\circ}C$  и данните, получени от кода, за активността при 209,7h сорбция и 118,5h десорбция от 15g поликарбонатни гранули от *Експеримент 2* при  $T = 25^{\circ}C$ ,  $T = 26^{\circ}C$  и  $T = 29^{\circ}C$ .

## 5. Заключение

Високата абсорбционна способност на поликарбонати, базирани на "bisphenol-A", е в основата на методи за измерване концентрацията на РБГ в различни среди. За широкото прилагане на тези методи е необходимо количествено описание на процесите на сорбция и десорбция в поликарбонати. В рамките на дипломната работа бе разгледан разработен теоретичен модел, описващ тези процеси в поликарбонатни образци с различна геометрия. Базиран на теоретичният модел е разработен компютърен код, позволяващ прецизни пресмятания за образци с форма на цилиндър (гранули). За практическото приложение на кода е необходимо неговото валидиране. За целта, в рамките на дипломната работа бяха проведени експерименти, при които бяха облъчени поликарбонатни гранули в среда с известна обемна активност на Rn-222. След това бе измерена абсорбираната активност и бе проследено нейното изменение във времето при процесите на сорбция и десорбция. При същите условия на експериментите бяха направени пресмятания за абсорбираната в гранулите активност с помощта на компютърния код. Получените от кода резултати бяха сравени с експерименталните. Разликата между експерименталните данни и тези OT компютърният код е по-малка от 10%. Това показва, че пресмятанията с кода добре описват процесите на сорбция и десорбция в поликарбонатни гранули.

Валидирането на компютърният код, позволява приложението му при планиране на експерименти за пресмятане и оценка на погълнатата активност, при определяне на връзката между абсорбираната активност в поликарбонати и активността в околната среда, при практическото приложение на методите, за конкретни условия на облъчване. Освен това, кодът позволява оценка на влиянието на различни фактори, влияещи на процесите на сорбция и десорбция като температурната зависимост на тези процеси, разлики в геометрията на поликарбонатните обраци. Това съществено улеснява и спомага широкото приложение на методите за измерване на РБГ, основаващи се на абсорбция на РБГ в поликарбонати.

## 6. Използвани източници

[1]. Brookheaven National Laboratory, National nuclear data center: Chart of nuclides. <u>http://www.nndc.bnl.gov/</u>

[2]. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, Sources and effects of ionizing radiation, UN Publications, New York, USA, 2000

[3]. World Health Organization. WHO Handbook On Indoor Radon – A Public Health Perspective, 2009. <u>http://www.who.int/ionizing\_radiation/env/9789241547673/en/</u>

[4]. International Atomic Energy Agency, Review of Fuel Failures in Water Cooled Reactors, IAEA NUCLEAR ENERGY SERIES No. NF-T-2.1. IAEA, Vienna, Austria, 2010

[5]. D. Pressyanov, K. Mitev, and V. Stefanov, Measurement of <sub>85</sub>Kr and <sub>133</sub>Xe in air by absorption in Makrofol. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A, 527:657\_659, 2004

[6]. "Radon Gas – Where From And What To Do?", G. Jónsson, Lund University, Radiation Measurement, Vol. 25, Nos1-4, pp. 537-546, Elsevier Science, 1995

[7]. K. Mitev, 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

[8]. D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, I. Dimitrova, "Sorption and desorption of radioactive noble gases in polycarbonates", Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A, 598:620–627, 2009

[9]. K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, T. Boshkova, V. Zhivkova, "Measurement of Krypton-85 in water by absorbtion in polycarbonates.", Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. A, 603:491\_494, 2009

[10]. Michael F. L'Annunziata, "Handbook of radioactivity analysis – 2<sup>nd</sup> Edition", Chapter IX: Cherenkov counting – p. 719-797, Elsevier 2003

[11]. S. Georgiev, K. Mitev, D. Pressianov, G. Gerganov, I. Dimitrova, "Computer code for precise calculations of the activity and the depth distribution of radioactive noble gases absorbed in polycarbonates", Proceedings of the 21th National Scientific Symposium with international participation "Metrology and Metrology Assurance 2011", September 10-14, 2011, Sozopol, Bulgaria. ISSN 1313-9126, pp. 278-283

[12]. D. Pressyanov, J. Buysse, A. Poffijn, A. Van Deynse, G. Meesen, Nucl. Instr. and Meth. A 516 (2004) 203

[13]. D. Pressyanov, "Measuring Radioactive Noble Gases by Absorption in Polycarbonates and Other Organics: From Radon Indoors to Nuclear Safety", Radiation Physics, 2013

[14]. Commission of the European Communities. Commission recommendation of 18 December 2003 on standardized information for radioactive airborne and liquid discharges into the environment from nuclear power reactors and reprocessing plants in normal operation (notified under document number C(2003) 4832), OJ L 344, 28/12/2003, 85

[15]. P.R.J. Saey and L. E. de Geer, Appl. Radiat. Isot. 63, 765-773, 2005

[16]. D. Pressyanov, K. Mitev, I. Dimitrova, S. Georgiev, "Solubility of krypton, xenon and radon in polycarbonates. Application for measurement of their radioactive isotopes", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, Elsevier, 2010

[17]. I. Dimitrova, S. Georgiev, K. Mitev, "Influence of the Water Temperature on Measurements of Rn-222 in Water by Liquid Scintillation Counting of Polycarbonates", Member, IEEE, D. Pressyanov, IEEE, 2012

[18]. D. Pressyanov, S. Georgiev, I. Dimitrova, K. Mitev, T. Boshkova, "Determination of the diffusion coefficient and solubility of radon in plastics", Radioation Protection Dosimetry, 2011

[19]. S. Georgiev, K. Mitev, I. Dimitrova, D. Pressianov, "Computer code for precise calculation of the activity of radioactive noble gases absorbed in polycarbonate grains", Metrology and Metrology Assurance 2012

[20]. K. Mitev, "On the possibility to detect some radioactive noble gases by Cherenkov counting of polycarbonates", IEEE, manuscript 2013

[21]. Glenn F. Knoll, "Radiation Detection and Measurement", Chapter 19: Cherenkov Detectors, p. 711-713

[22]. Страхил Георгиев, "Ядрено физични методи за изследване на миграцията на радиоактивни благородни газове", Докторска дисертация, ФЗФ, Софийски Университет "Св. Климент Охридски", 2012

[23]. Красимир Митев, Систематизирани резултати: VII. Изследване на фона (15.02.2013), 2013