

Софийски университет “Св. Климент Охридски”
Физически факултет

АВТОРЕФЕРАТ

на дисертация за придобиване на
научната и образователна степен доктор

Научна специалност: 01.03.04 Ядрена физика

Ивелина Стоянова Димитрова

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

Научен ръководител: доц. д-р Добромир Пресиянов

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

София

2011

Дисертационната работа съдържа 153 страници (без библиографията), 56 фигури и 24 таблици. Библиографията обхваща 152 заглавия.

Ивелина Димитрова е редовна докторантка в катедра "Атомна физика" на Физически Факултет на Софийски университет "Св. Климент Охридски". Изследванията, представени в дисертационния труд, са извършени в "Лаборатория дозиметрия и лъчезащита" във Физически Факултет на Софийски университет "Св. Климент Охридски".

Защитата на дисертационният труд ще се проведе на
в аудитория във Физически Факултет на Софийски университет "Св.
Климент Охридски", пред научно жури в състав:


....., председател

.....

.....

.....

.....



Софийски университет “Св. Климент Охридски”
Физически факултет

АВТОРЕФЕРАТ

на дисертация за придобиване на
научната и образователна степен доктор

Научна специалност: 01.03.04 Ядрена физика

Ивелина Стоянова Димитрова

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

Научен ръководител: доц. д-р. Добромир Пресиянов

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

София

2011

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

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

Тези изчистени формулировки са от най-често повтаряните в научните текстове, посветени на радона. Без наличие на допълнителна информация тежестта на проблема остава скрита в тях. Затова с риск да изляза от твърдата почва на „научно доказаното“ и екстраполирайки да нагазя в мочурището на спекулациите, ще си позволя да „преведа“ горните твърдения. На статистически език те означават, че годишно само в България няколкостотин души умират вследствие на облъчване от радон¹. Това число не е много по-малко от броя на жертвите от катастрофи (775 за 2010 г.²). В човешки план белодробният рак означава изключително мъчително боледуване, травматично лечение и почти сигурен фатален край.

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

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

²По данни на КАТ, разпространени от новинарските агенции.

Съдържание

I	Цели и структура на дисертационния труд. Актуалност на проблемите.	1
I.1	Проблемът с облъчване от ^{222}Rn в жилища	2
I.2	Измерване на $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ във води	5
II	Развитие на компакт-дисксовия метод. Резултати от реални измервания.	7
II.1	Броење на трекове в дискове.	8
II.2	Калибриране.	11
II.3	Оценка на обемната активност и комбинираната и неопределеност. Диапазон на компакт-дисксовия метод.	13
II.4	Резултати от проведени измервания.	16
II.5	Основни резултати и изводи от изследванията в Глава III от дисертацията .	20
III	Измерване на ^{222}Rn във води чрез абсорбция в поликарбонати. Пилотни измервания на ^{226}Ra.	22
III.1	Метод за измерване на ^{222}Rn във води чрез абсорбция в поликарбонати и бета/гама-измервания.	23
III.2	Основни резултати и изводи от изследванията в Глава IV от дисертацията .	32
IV	Приноси и публикации	34
IV.1	Приноси на дисертацията, за които авторът има водеща роля	34
IV.2	Публикации, в които са представени резултатите от дисертацията	35

I. Цели и структура на дисертационния труд. Актуалност на проблемите.

Целите на дисертацията са следните:

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

Глава I от дисертацията е уводна.

Глава II от дисертацията е обзорна. В нея са разгледани механизмите за формиране на дозата и риска при облъчване от ^{222}Rn и са формулирани критерии при избор на методи за епидемиологични проучвания. Направен е кратък обзор на методите за ретроспективни измервания на ^{222}Rn . Най-широко използваният от тях метод на имплантираното в стъкло ^{210}Pb е разгледан по-детайлно. В този обзор е включен и компакт-дисксовият метод, като са разгледани резултатите от първоначалните изследвания върху него, проведени преди прилагането му в Софийски университет „Св. Климент Охридски“. Направено е сравнение между методите, като са коментирани техните предимства и недостатъци. Аргументирано е твърдението, че компакт-дисксовият метод има голям потенциал за точни ретроспективни измервания.

В **Глава III** от дисертацията е представена работата по развитие на компакт-дисксовия метод. Представена е процедурата за обработка на дисковете. Описан е разработеният от нас алгоритъм за броене на проявените трекове, неговото валидиране и оценката на диапазона му на приложимост. Представена е установената процедура за калибриране, като са посочени условията за приложимост на оценените калибровъчни коефициенти.

Разгледани са източниците на неопределеност в оценките за обемната активност на радона и подходите за прилагане и оценка на коригиращи коефициенти. Представени са резултати от международно сравнение, в което участвахме с компакт-дисквия метод. Представени са и резултати от пилотни ретроспективни измервания на ^{222}Rn при реални условия в сгради и са обобщени възможностите на метода за мащабни проучвания.

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

Глава V е заключителна. В нея са систематизирани най-важните резултати от изследванията в дисертацията. Посочени са приносите, за които авторът има водеща роля. Даден е списък с публикации, в които са представени резултатите от дисертацията.

Глава VI се състои от две приложения. **Приложение А.** представлява теоретично описание на процесите на сорбция и десорбция на ^{222}Rn в поликарбонати. Разгледани са следствия от модела, които показват как теоретичният модел може да се използва за оптимизиране на измерванията на ^{222}Rn чрез абсорбция в поликарбонати и за корекция на калибровъчния коефициент при различаващи се условия. В **Приложение Б.** е представен подходът за оценка на критичното ниво и минималната детектеруема активност, приложим за измервания на облъчени поликарбонати чрез общо бета-броене, чрез гама-спектрометрия и чрез ецване на трекове от алфа-частици.

I.1 Проблемът с облъчване от ^{222}Rn в жилища

Радон-222 (радон) е естествен радиоактивен благороден газ с период на полуразпадане 3.82 дни. Той е от семейството на ^{238}U и се получава при разпадането на ^{226}Ra с период на полуразпадане 1600 год. Уран-238 и продуктите му се съдържат в почвата и скалите, а оттам могат да попаднат и в подпочвените води. Като инертен газ, радонът успява да мигрира на значителни разстояния от мястото на образуването си. Той се натрупва

в затворени помещения, като са установени три основни начина за постъпването му в сгради. Най-честият източник е почвеният газ, проникващ през основите на сградата [2]. Радонът в почвения газ би могъл да се дължи както на ^{226}Ra , съдържащ се в почвата или скалите, така и на дееманиране от подпочвени води. Вторият начин е ексхалацията на радон от строителни материали. Третият е свързан с използването за битови нужди на вода, съдържаща ^{222}Rn , при което радонът дееманира във въздуха. Този начин е от значение в случаи, в които се използва кладенчова или минерална вода.

Проблемът с облъчването от радон в жилища получава по-широк отзвук едва през 80-те години на миналия век. Понастоящем, епидемиологичните проучвания показват, че статистически значим риск за белодробен рак се наблюдава дори при обемни активности под 200 Bq.m^{-3} [4]. Преобладава мнението, аргументирано от много специалисти, че няма праг на безопасност [2, 5]. Оценката на риска, получена от най-масовото проучване сред населението, показва, че дълготрайно повишение в средната обемна активност на радона в дадено жилище със 100 Bq.m^{-3} води до повишение на риска от белодробен рак с 16 % (при 95 % доверителен интервал 5-31 %) [4]. Оценката на средната за света обемна активност на ^{222}Rn в жилища е 39 Bq.m^{-3} , като в някои държави е 2-3 пъти по-висока [2]. По-голяма част от случаите на белодробен рак, дължащи се на радона, са причинени от облъчване при ниски и средни нива на обемната активност [2]. По тази причина Световната здравна организация (СЗО) препоръчва референтно ниво 100 Bq.m^{-3} , над което да бъдат предприемани мерки за снижаване на облъчването от радон в жилища. Ако това ниво не е разумно достижимо, СЗО препоръчва референтното ниво да е не по-високо от 300 Bq.m^{-3} [2].

„Атакуването“ на радоновия проблем минава през провеждането на мащабни проучвания, при които да се открият отделните сгради с повишена обемна активност, както и да се маркират райони с повишен радонов риск. За постигането на тези цели са необходими методи за измерване на радона в жилища/сгради, които са подходящи за масови измервания. Тези методи трябва да са прости за реализиране, с ниска цена и същевременно достатъчно точни. Поради значителните вариации на обемната активност на радона, които в рамките на дни могат да достигнат няколко порядъка, е необходимо измерванията да са кумулативни. СЗО препоръчва при проучванията да се провеждат едногодишни измервания, за да се избегне влиянието на сезонните вариации [2]. Дори едногодишни измервания, обаче, не са представителни за средната стойност на обемната активност за по-дълъг период. Наблюдавани са значителни случайни вариации на средногодишната обемната активност на радона в жилища [6, 7]. Поради това е препоръчително измерванията да обхващат възможно най-дълъг период.

Другата важна цел на радоновите проучванията е прецизирането на оценката на риска за развитие на рак на белия дроб и проверка на възможността ^{222}Rn да е причинител и на други заболявания. Макар че това са по скоро дозиметрични проблеми, най-директният подход за адресирането им е чрез епидемиологични проучвания сред населението [2, 5]. Като основен проблем на епидемиологичните проучвания се посочва недоброто познаване на облъчването, което участниците са получили в миналото [8, 9, 10]. Необходимо е да се познава историческото облъчване през период преди установяване на заболяването, който се определя от характерния латентен период. Директна оценка на историческото облъчване дават така наречените методи за ретроспективни измервания. Обикновено тези методи са сравнително сложни и са свързани с висока неопределеност на измерването. Тъй като при епидемиологичните проучвания сред населението се работи в областта на ниските дози, откриването на статистически значим риск изисква максимално висока точност на оценката на облъчването. Това е може би причината до този момент в света да са проведени едва няколко неголеми проучвания, базирани на ретроспективни измервания на радон.

Изборът на подходящи методи за епидемиологични проучвания изисква познаване на механизмите на формиране на дозата и риска и факторите, които им влияят. Тези механизми са разгледани накратко в Глава II от дисертацията. На база на тези разглеждания са формулирани следните критерии за избор на ретроспективни методи:

- **Методът да позволява ретроспективни измервания, като обхваща достатъчно дълъг период в миналото (поне 15 години назад).**
- **Резултатите за обемната активност на ^{222}Rn във въздуха да са с ниска неопределеност и да е минимална вероятността за значителна грешка, особено в посока подценяване на обемната активност.**
- **Методът да е подходящ за масови кампании, т.е. измерванията да са с ниска цена, да не изискват високо специализирана лаборатория и да могат да бъдат организирани бързо.**
- **Методът да дава резултати и при ниски нива на обемната активност на радона (например около средното $40 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$), при които живеят повечето хора.**
- **Да е възможно методът да се използва и при смяна на жилището, т.е. използваните предмети-свидетели обичайно да се пренасят със собствениците си.**

В Глава II от дисертацията е направено сравнение между предложените в литературата методи за ретроспективни измервания на ^{222}Rn . Това са методът на имплан-

тираното в стъкло ^{210}Pb [11, 12], методът на обемните уловки [13], методът на лещите на очилата [14], методът на натрупаното в костите ^{210}Pb и компакт-дискосият метод [15]. Сравнението показва, че компакт-дискосият метод е единствения, който отговаря на всеки от горните критерии. Той обхваща достатъчно дълъг период назад във времето, характеризира се с ниска неопределеност и висока надеждност, има проста методология и ниска цена. Методът позволява измервания в широк диапазон от обемни активности на радона и използва дискове, които обикновено се пренасят със собственика си в случай на смяна на жилище. Освен, че компакт-дискосият метод е най-подходящ за ретроспективни измервания на ^{222}Rn , той едновременно с това не отстъпва на методите, рутинно прилагани за откриване на проблемни сгради. Затова, една от поставените цели е да се развие компакт-дискосият метод и да се изследва работата му при реални измервания, за да е готов за провеждане на мащабни кампании.

I.2 Измерване на $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ във води

Откриването на сгради и райони с повишен риск има основно лъчезащитна цел и трябва да е последвано от предприемане на противорадонови мерки. Изборът на адекватни мерки изисква прецизно изследване на източниците на радон. Затова са необходими методи за измерване на радон във води и в почвен газ. Тези методи също трябва да са подходящи за масови измервания. За нуждите на контрола на нивата на ^{222}Rn във водоизточници е достатъчно с метода да могат да бъдат детектирани обемни активности на радона под 100 Bq.l^{-1} . Това е референтната стойност, препоръчвана от Комисията на Европейската Общност, над която Страните Членки на Европейския Съюз трябва да определят референтно ниво на обемната активност на радон, което да се използва при решения за вземане на мерки за защита на човешкото здраве [16]. Световната здравна организация също препоръчва мерки за снижаване нивата на радон в източниците на питейна вода при обемни активности, надвишаващи 100 Bq.l^{-1} [17].

От друга страна, методите за измерване на ^{222}Rn във води по принцип могат да бъдат прилагани и за измерване на ^{226}Ra във вода. За тази цел, обемната активност на ^{226}Ra се оценява чрез измерване на генерирания от него ^{222}Rn . Изискванията към минималната детектуема обемна активност на методите за измерване на ^{226}Ra в питейна вода са по-стриктни, тъй като ^{226}Ra е силно радиотоксичен при поглъщане. Той се натрупва в костите и може да причини костна саркома и левкемия. Поради това, ^{226}Ra е класифициран като карценоген от група-A и съдържанието му в питейна вода подлежи на контрол. В България действащата норма за обемната активност на ^{226}Ra в питейна

вода е 0.15 Bq.l^{-1} [18]. Агенцията за защита на околната среда в САЩ (US EPA-United States Environmental Protection Agency) е постановила общо максимално ниво на замърсяване с ^{226}Ra и ^{228}Ra във води, което е 0.185 Bq.l^{-1} , като измервания на ^{228}Ra се изискват, когато обемната активност на ^{226}Ra надвишава 0.111 Bq.l^{-1} [19].

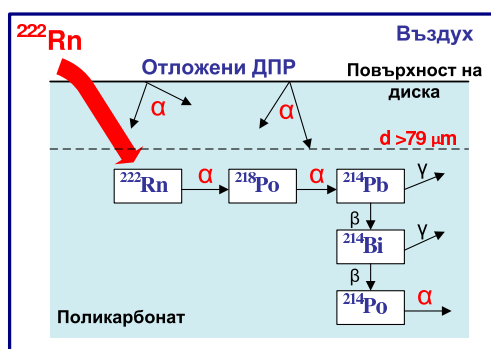
Освен в радиационната защита, измерванията на ^{222}Rn и на ^{226}Ra във води намират широко приложение в хидрогеологията и океанографията. И радонът и радият независимо се използват като маркери за проследяване на транспорта и смесването на водни потоци в различни водни басейни.

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

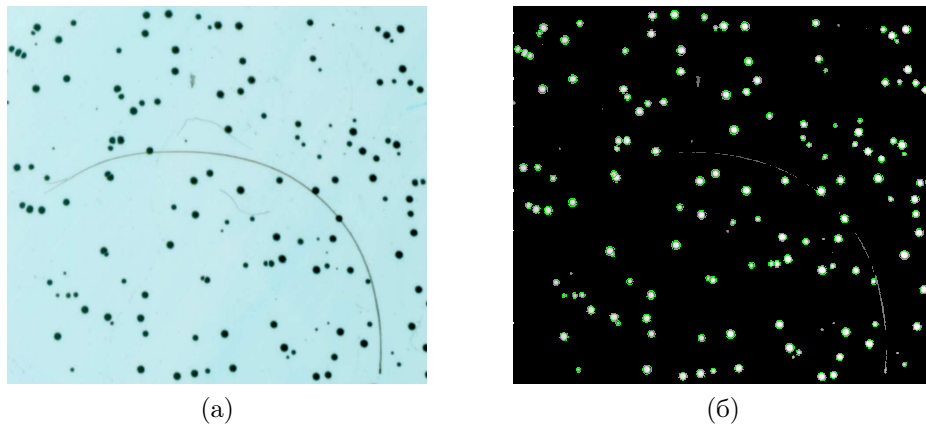
През 1999г. Д. Пресиянов и сътрудници предложиха поликарбонатен (компакт-диск) метод за ретроспективни измервания на радон в сгради [15]. Компакт-дисквият метод се основава на способността на материала, от който се изработват дисковете (CD и DVD), да абсорбира радон [20]. Този материал е вид поликарбонат, за който е известно, че притежава свойства на твърдотелен детектор на следи. Детектори, направени от този материал, се използват за регистриране на алфа-частици и намират приложение в проспективните измервания на радон [21]. Авторите на компакт-дисквия метод за пръв път предлагат способността на поликарбонатния материал да абсорбира радон да се комбинира с треките му свойства и да се използва за ретроспективни измервания на радон [22, 23, 24].

Същността на компакт-дисквия метод се състои в проявяване на треките, формирани в поликарбонатния материал на диска на определена дълбочина d , по-голяма от $79 \mu\text{m}$. Плътността на проявените трекове (броят трекове върху единица площ) е пропорционална на обемната активност на ^{222}Rn във въздуха, интегрирана по времето на облъчване.

Етапите от едно измерване на ^{222}Rn чрез компакт-диск са следните: проявяване на треките на определена дълбочина (чрез химично преецване и електрохимично ецване), определяне на плътността на треките чрез броене и оценка на средната обемна активност на радона, чрез калибровъчен коефициент. Тези етапи са подробно описани в Глава III от дисертацията. По-долу са представени само изследванията с най-голямо значение за оптимизиране на метода за целите на масови измервания.



Фигура II.1: Илюстрация на процесите при облъчване на диск в атмосфера, съдържаща радон. Поликарбонатният материал абсорбира ^{222}Rn . В диска ^{222}Rn и краткоживеещите му продукти ^{218}Po и ^{214}Po излъчват алфа-частици, които формират трекове. На дълбочина по-голяма от $79 \mu\text{m}$, треките се дължат само на абсорбирания радон и получените от него нуклиди.



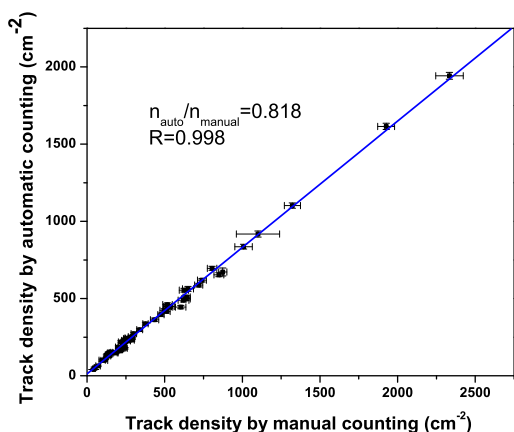
Фигура II.2: (а) Сканирано изображение на ецван диск. (б) Резултат от прилагането на алгоритъма (представен е негатив). Преброените трекове са оградени със зелени кръгове, фонът е премахнат, а артефактите не са преброени, поради асиметричната им форма или малкия им размер.

II.1 Броене на трекове в дискове.

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

В литературата са предложени малък брой алгоритми за броене на електрохимично ецвани трекове [25, 26]. Плътноста на трековете, до която са приложими тези алгоритми, е не по-голяма от 1000 cm^{-2} . Директното прилагане на съществуващите алгоритми към сканирани изображения на електрохимично ецвани трекове в дискове не дава добри резултати. Една от причините е, че трековете са сравнително големи и имат специфична дървовидна структура. Тази структура затруднява разделянето на близкостоящи трекове при броенето. Другата причина са драскотините по повърхността, които винаги са налице при дискове, използвани за ретроспективни измервания. Част от драскотините се проявяват при преецването и ецването и пораждат артефакти в изображението, които трябва да бъдат игнорирани от алгоритъма за броене. Затова си поставихме за цел да разработим ефективен алгоритъм за автоматично броене на електрохимично ецвани трекове в CD/DVD-та, който да се справя с горепосочените проблеми. Алгоритъмът е описан в Глава III от дисертацията.

Въз основа на предложения алгоритъм е разработена програмата „DGTrack“. Тя вече е успешно използвана при стотици измервания на радон чрез CD/DVD-та. Из-



Фигура II.3: Зависимост между плътности на трековете в дискове, оценени чрез броене с оптичен микроскоп и чрез автоматично броене с програмата DGTrack след сканиране с компютърен скенер. Неопределеностите на точките са на ниво едно стандартно отклонение. Правата е получена по метода на най-малките квадрати, като е даден ъгловият и коефициент и коефициента на корелация R.

ползвана е при броене на трекове в нови дискове, облъчени в лабораторни условия с цел калибриране. Използвана е и за стари и надраскани дискове, съхранявани в жилища за поне няколко години, преди да бъдат събрани за ретроспективни измервания на ^{222}Rn . Освен това, е използвана за броене на трекове в дискове, облъчени в почвен газ и вода. При тези изследвания обработихме голям брой дискове с различни плътности на трековете. Те бяха използвани за сравнение на резултатите от автоматичното и „ръчното“ броене. Беше направено и сравнение между двете техники по отношение на продуктивност и диапазон от плътности на трековете, за които са приложими.

Между плътностите на трековете, определени чрез „ръчно“ и автоматично броене е получена много добра корелация (Фиг. II.3). Ъгловият коефициент на правата, който има смисъл на относителна ефективност на автоматичното броене спрямо „ръчното“, е $a = 0.818 \pm 0.006$. При дадените условия на облъчване и измерване, автоматичното броене пропуска около 20 % от трековете, видими с микроскопа. По-ниската ефективност на броенето с „DGTrack“ спрямо „ръчното“ броене се компенсира от предимствата на този подход. Важен извод от направеното сравнение е, че ефективността на броенето с „DGTrack“ е еднаква за широк диапазон от плътности на трековете - до 2000 tr.cm^{-2} . Тя се запазва за детектори от различни марки и с различна възраст, облъчени в различна среда и обработвани в независими сесии. Още по-важно е, че качеството на броене е еднакво за нови и за използвани дискове. Това е предпоставка за съгласуваност между резултатите, получени при калибриране на нови дискове и при реални измервания с използвани дискове.

Скоростта на броене и диапазонът от плътности на трековете на двата подхода за броене са сравнени в Таблица II.1. В таблицата е дадена максималната плътност на трековете, при която може да се използва дадено увеличение на микроскопа. При по-големи увеличения размерът на полето става близък до този на отделните трекове (с диаметър

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

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

около $100 \mu\text{m}$). Като критерий за минимална плътност на трековете, може да се въведе максимална стойност на относителната неопределеност, с която се оценява плътността. В Таблица II.1 са дадени стойностите на плътността на трековете, над които относителната неопределеност не надвишава 10 %. При броене с микроскоп, неопределеността δn_{max} зависи от броя полета, преброени при даденото увеличение. Да се преброят по повече от 25 полета от всеки детектор е нецелесъобразно. Сравнението между скоростите на броене е направено по два критерия. Първият е времето, за което се преброяват 30 детектора (колкото е дневният капацитет на нашата лаборатория). Макар, че скоростта на оптичното броене зависи от броя трекове, видими през едно поле, може да се приеме, че един детектор се преброява средно за 5 минути и съответно 30 детектора за 150 минути. Сканирането и броенето на 30 детектора с „DGTrack“ отнема не повече от 75 минути и по-голямата част от това време се изразходва за сканиране (включително за позициониране на детекторите върху скенера). Реалното време, за което „DGTrack“ анализира изображение с площ 4 cm^2 при модерен компютър (Intel Core2 Quad CPU @ 2.5 GHz, 2 GB RAM) е по-малко от 10 секунди. Вторият избран критерий е скоростта на броене, дефинирана като отношение на анализираната площ към времето за преброяване на трековете върху нея. От Таблица II.1 се вижда, че макар, при най-малкото увеличение скоростите на ръчното и автоматичното броене да се различават само два пъти, тази разлика значително нараства при по-големите увеличения.

Направеното сравнение показва, че автоматично броене с „DGTrack“ лесно покрива почти цялата обработена повърхност на диска и позволява да се постигнат по-ниски относителни неопределености на оценената плътност на трековете в сравнение с „ръчното“. Освен това, при автоматично броене изображенията на преброените детектори могат да бъдат запазени, за архив или за контрол на качеството на броене. Автоматичното броене е по-бързо и по-малко уморително за оператора. Горейзброените предимства на автоматичното броене го правят много подходящо за широкомащабни измервания.

II.2 Калибриране.

По същество калибрирането представлява определяне на калибровъчния коефициент CF дефиниран като:

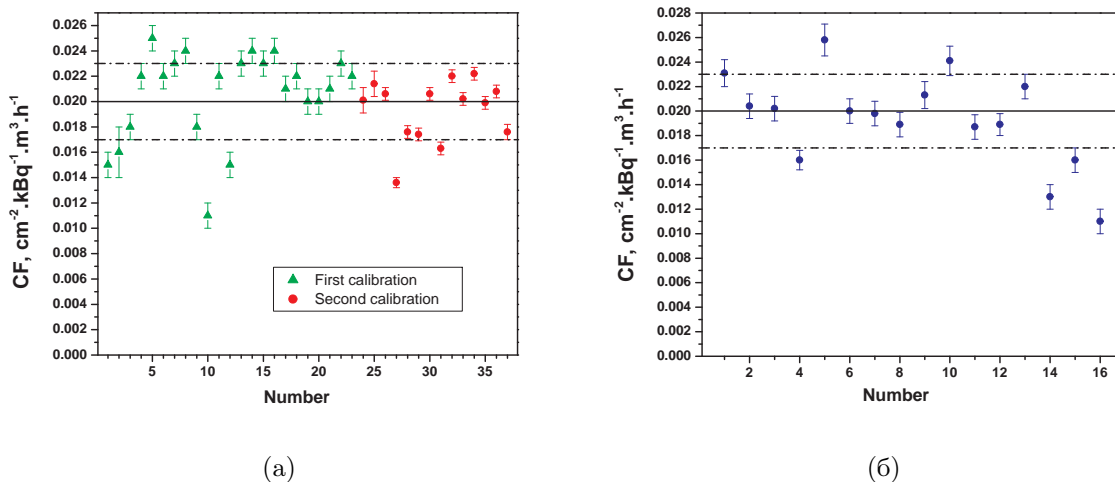
$$CF(T, d) = \frac{n_{\text{net}}(T, d)}{I_V}, \quad (\text{II.1})$$

където $n_{\text{net}}(T, d)$ е чистата плътност на трековете (т.е. плътността след изваждане на фоновата плътност) на дълбочина d при температура на облъчване T , а I_V е интегрираната по времето обемна активност на радона, при която е проведено облъчването. Един от най-важните въпроси при ретроспективните измервания е доколко резултатите, получени при използване на отделни предмети-свидетели, които не са специално разработени за целта детектори на радон, се различават помежду си. В случай, че калибровъчният коефициент на различните дискове съвпада, той може да се прилага при всяко измерване (като периодично се проверява). В случай, че между калибровъчните коефициенти на дисковете се наблюдават значими разлики е необходимо всеки диск да бъде калибриран индивидуално. Едно от съществените предимства на CD-метода е, че всеки диск може да бъде индивидуално калибриран след измерването (т.нар. *a posteriori* калибриране). Това се реализира чрез допълнително облъчване на част от диска, която не е използвана за проведеното измерване. За да изберем подход за калибриране (т.е. прилагане на общ предварително определен калибровъчен коефициент или провеждане на *a posteriori* калибриране на всеки диск), изследвахме калибровъчните коефициенти на различни нови и използвани дискове.

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

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

Процедурата за калибриране, разработена в лаборатория „Дозиметрия и лъчезащита“, е подробно представена в Глава III от дисертацията. Бяха проведени две калибровъчни сесии - условията на облъчването и средните калибровъчни коефициенти (при автоматично броене на трековете с DGTrack) са дадени в Таблица II.2. Неопределеностите на средните коефициенти са оценени като стандартно отклонение на калибровъчните коефициенти на дисковете от съответната група. Спрямо него неопределеността на всеки



Фигура II.4: Калибровъчни коефициенти, получени при калибрирането на различни дискове: (а) нови CD/DVD, облъчени в две сесии - съответно означени с 1 и 2а в Таблица II.2; (б) използвани CD, облъчени в сесия 2б от таблицата. Линиите маркират средния по всички дискове калибровъчен коефициент и границите на доверителния интервал, в който попада той при 1σ .

отделен калибровъчен коефициент е пренебрежима.

Вижда се, че средните калибровъчни коефициенти на новите дискове, облъчени в кратката и в дългата сесия, съвпадат в рамките на неопределеностите си. Това показва, че при калибриране облъчването на компакт-дискове може да се реализира в рамките на едно денонощие. Освен това, резултатите в Таблица II.2 показват, че средните калибровъчни коефициенти на новите и на използваните дискове съвпадат. Въпреки съответствието между средните калибровъчни коефициенти на дисковете от различните групи, между индивидуалните калибровъчни коефициенти се наблюдават съществени разлики (Фиг. II.4). От фигурите се вижда, че има отделни дискове, при които стойността на CF значително се различава от средната. Максималните наблюдавани относителни разлики спрямо средната стойност са $+30\%$ и -45% . Представените резултати са сериозен аргумент в полза на *a posteriori* калибрирането, особено в случаи, в които обемната активност на радона в дадено жилище се оценява само на базата на един изследван диск. От лъчезащитна гледна точка, най-неблагоприятният вариант е да се използва средният калибровъчен коефициент за диск с много по-малък индивидуален калибровъчен коефициент и да се подцени обемната активност на радона. Избраният от нас подход е следният - да се направи първоначална оценка на базата на среден калибровъчен коефициент ($CF_{av} = 0.020 \pm 0.003 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{kBq}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$). В случай, че обемните активности не надвишават $40 \div 50 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ е допустимо тази оценка да се използва, за да се спести време при мащабна кампания. Тъй като до този момент не сме наблюдавали калибровъчни ко-

ефициенти повече от 2 пъти по-ниски от средния, се очаква, че това няма да доведе до пропускане на сгради с радонов проблем. В случаите, когато ретроспективните измервания се провеждат с цел епидемиологични проучвания, е коректно всеки от дисковете да се подложи на *a posteriori* калибриране. Дори тогава, предварителната оценка на база на среден калибровъчен коефициент е важна, тъй като помага да се планира калибровъчното облъчване.

II.3 Оценка на обемната активност и комбинираната и неопределеност. Диапазон на компакт-дисквия метод.

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

$$\overline{A_v} = \frac{n_{\text{net}}(d_0)}{T_{\text{exp}} CF(d_0)} = \frac{n_{\text{base}}(d_0) - n_{\text{bg}}(d_0)}{CF(d_0) \cdot T_{\text{exp}}}, \quad (\text{II.2})$$

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

При реални измервания фоновата плътност е неизвестна, т.е. не е известно каква е била плътността на трековете, когато дискът е бил придобит от собствениците си. Непознаването на фоновия сигнал е проблем, характерен за ретроспективните методи. За да се оценят мащабите на този проблем при компакт-дисквия метод и да се определи препоръчителна стойност за n_{bg} , бе изследвана фоновата плътност в нови дискове. Деветнадесет нови диска (CD и DVD) от различни марки бяха купени от няколко различни места. В тях фоновата плътност на трековете на дълбочина $80 \mu\text{m}$ под повърхността бе от 1.5 до 49.5 tr.cm^{-2} . Оценената средна стойност е $n_{\text{bg}}^{\text{av}} = 6.3 \pm 2.4 \text{ tr.cm}^{-2}$. За оценка на грешката, до която би могла да доведе използването на оценената средна фоновата плътност е използван подход, базиран на екстремните стойности. Грешката е оценена при най-голямата от наблюдаваните стойности на плътността на трековете $n_{\text{bg}} = 49.5 \text{ tr.cm}^{-2}$ и при най-малката теоретично възможна $n_{\text{bg}} = 0$:

- Нека истинската стойност на фоновата плътност на трековете е $n_{\text{bg}}^{\text{true}} = 0$. Тогава грешката в чистата плътност на трековете ще бъде $\text{err}_{n_{\text{net}}} = n_{\text{bg}}^{\text{av}} - n_{\text{bg}}^{\text{true}} = 6.3 \text{ tr.cm}^{-2}$. В този случай обемната активност ще бъде подценена. Грешката ще е толкова по-голяма колкото е по-малък калибровъчният коефициент на дадения диск. Нека калибровъчният коефициент е равен на минималния наблюдаван от нас калибровъчен коефициент $CF = 0.011 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{kBq}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. Тогава $\text{err}_{A_v}^{(-)} = -65 \text{ Bq.m}^{-3}$ при ед-

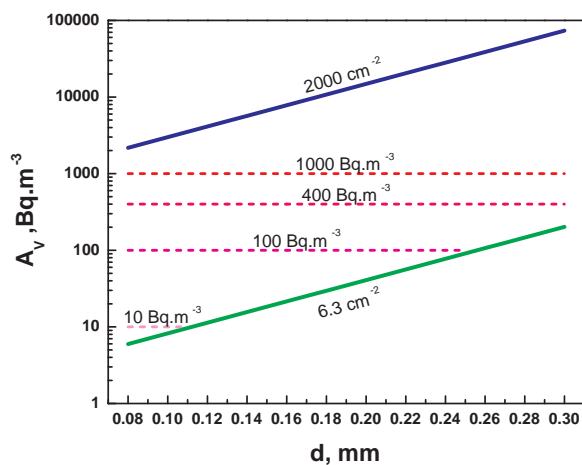
ногодишно облъчване. Използването на дискове, облъчени по-малко от година не е препоръчително. Затова стойността 65 Вq.m^{-3} е всъщност оценка за максималната стойност на обемната активност, която би могла да бъде „пропусната“ при измерване. Можем да приемем тази стойност за долна граница на метода при едногодишно облъчване. При петгодишно облъчване $err_{Av}^{(-)} = -13 \text{ Вq.m}^{-3}$. Подценяване на обемната активност в тези абсолютни граници не крие опасност за пропускане на сериозен радонов проблем.

- Нека максималната наблюдавана плътност на трековете е истинската, т.е. $n_{bg}^{true} = 49.5 \text{ tr.cm}^{-2}$. В този случай грешката би била максимална, когато дискът не е реално облъчен, по-точно $A_V^{true} \rightarrow 0$. Нетната плътност на трековете, оценена на базата на n_{bg}^{av} , ще бъде $n_{net} = n_{bg}^{true} - n_{bg}^{av} = 43.2 \text{ tr.cm}^{-2}$. При едногодишно облъчване и $CF = 0.011 \text{ cm}^{-2}.\text{kВq}^{-1}.\text{m}^3.\text{h}^{-1}$ това съответства на $err_{Av}^{(+)} = 448 \text{ Вq.m}^{-3}$. В този случай действително може да се получи „фалшив сигнал“ за радонов проблем. В практиката при наличие на сигнал за проблем винаги се правят допълнителни измервания на базата на поне още 1-2 диска с различен произход, облъчени за по-продължително време ($T_{exp} \geq 5$ години). Чрез тези допълнителни измервания се получава информация дали има реален проблем.

Тип <i>CF</i>	Компонента	Типична, %	Макс., %	Коментар
Среден	$\delta_{net/CF}$	19		
Индивид.	$\delta_{net/CF}$	9	17	
Среден/ Индивид.	δ_{Texp}	10	50	Макс. - облъчвания 1-2 у
Среден/ Индивид.	δ_{CT}	15	26	Типична - $d = 80 \mu\text{m}$, Макс. - $d = 120 \mu\text{m}$
Среден <i>CF</i>				
	$\delta_{Av} = \sqrt{\delta_{net/CF}^2 + \delta_{Texp}^2 + \delta_{CT}^2}$	26	60	Могат да се намалят
Индивидуален <i>CF</i>				
	$\delta_{Av} = \sqrt{\delta_{net/CF}^2 + \delta_{Texp}^2 + \delta_{CT}^2}$	20	60	чрез прилагане на температурна корекция [23].

Таблица II.3: Относителна неопределеност на средната обемна активност на радона, определена чрез измервания с дискове (без прилагане на температурна корекция). Разгледани са случаите, в които се използва среден и индивидуален калибровъчен коефициент. Неопределеността при използване на среден *CF* е малко по-висока, тъй като в нея е включена компонента, отчитаща разпределението на стойностите на *CF* за различни дискове. Типичната неопределеност на резултатите от CD-метода е 20 % при индивидуално калибриране. Максималната неопределеност е оценена на 60 % и тя се дължи основно на недобро датиране на дисковете. Подходът използван за оценка на всяка от компонентите на неопределеността е подробно описан в Глава III от дисертацията.

Типичните и максимални стойности на компонентите на неопределеността на



Фигура II.5: Диапазон на CD-метода при различни дълбочини на ецване. Плътните линии маркират долната и горната граница на обемната активност. Типично обемната активност на радона в жилища е в диапазона $10 \div 100 \text{ Bq.m}^{-3}$. Препоръчаната от Комисията на Европейската Общност референтна обемна активност в съществуващи жилища е 400 Bq.m^{-3} , с тенденция за понижаването и. В много Европейски страни се предприемат незабавни мерки при нива, надвишаващи 1000 Bq.m^{-3} .

$\overline{A_v}$ са систематизирани в Таблица II.3. Първата компонента ($\delta_{\text{net}/CF}$) отчита неопределеността на съотношението на чистата плътност на трековете и на калибровъчния коефициент (уравнение II.2). Тази компонента е разгледана поотделно за случая на използване на индивидуален (при който n_{net} и CF са зависими) и на среден калибровъчен коефициент (при който са независими). С $\delta_{\text{техр}}$ е означена неопределеността на времето на облъчване. Последната компонента (δ_{CT}) отчита, че температурата на облъчване в стаите може да варира. Оценките са направени при предположение, че средната стайна температура е 22°C , като типично варира от 18°C до 26°C . Дадена е и оценката за комбинираната относителна неопределеност. Тя показва, че при индивидуално калибриране на дисковете в повечето случаи може да се постигне неопределеност на средната обемна активност до 20 %.

На Фиг. II.5 е показан диапазонът, за който методът, комбиниран с автоматично броене, е приложим при различни дълбочини на ецване за време на облъчване 5 години. Оценката е на база на средния калибровъчен коефициент при дълбочина $80 \mu\text{m}$ ($CF = 0.020 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{kBq}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$). Фактът, че калибровъчният коефициент намалява експоненциално в дълбочина [23] е използван за разширяване на горната граница на метода, чрез ецване на по-големи дълбочини. Долната граница е оценена като максималната обемна активност, която може да бъде „пропусната“ (т.е. приета за нулева), поради използването на средна фонова плътност от 6.3 tr.cm^{-2} . Както се вижда, поликарбонатният метод е приложим от няколко Bq.m^{-3} до почти 100 kBq.m^{-3} при ецване до дълбочина $300 \mu\text{m}$. Практически, методът обхваща целия диапазон от обемни активности на радона, наблюдавани в жилища.

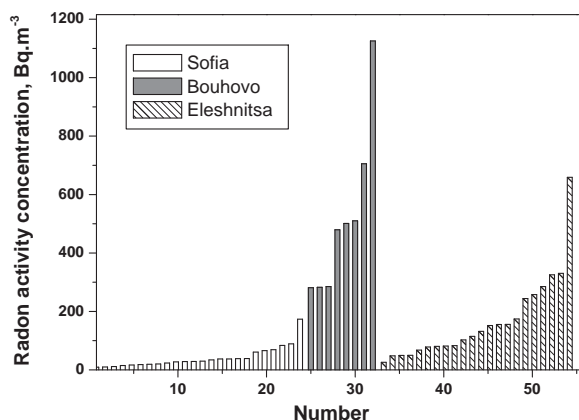
II.4 Резултати от проведени измервания.

II.4.1 Резултати от международно сравнение

Компакт-дисквият метод беше тестван в рамките на „сляпо“ сравнение по измерване на радон с пасивни детектори, организирано от Health Protection Agency (HPA), UK. Компакт-дисквите бяха облъчени от HPA и ни бяха изпратени по пощата. Предоставената предварително информация беше, че дисквите са обособени в четири групи от по десет диска - три облъчени при различни обемни активности и една необлъчена. Не беше предоставена информация кои дисквите в коя група са и какви са интегрираните обемни активности, при които са проведени облъчванията. Тъй като всички дисквите бяха от една марка и партида, за оценка на калибровъчния им коефициент 8 диска бяха калибрирани *a posteriori*. Оценените от нас стойности на интегрираната обемна активност на радона са показани в Таблица II.4 заедно с референтните стойности, обявени по-късно от HPA. Както се вижда, стойността, оценена чрез дисквите в група 3, съвпада с референтната стойност в рамките на оценената неопределеност. Стойността за дисквите в група 2 е под долната граница на метода, оценена на база на фоновата плътност на конкретната група дисквите. Стойността за дисквите в група 1 съвпада с референтната, но тъй като е близо до долната граница на метода резултатът е оценен с голяма неопределеност. Трябва да се има предвид, че това сравнение се организира за детектори за проспективни измервания с продължителност от няколко месеца до една година. Затова, интегрираните обемни активности, при които се провежда облъчването са сравнително ниски за компакт-дисквия метод, при който е желателно да се работи с облъчвания с продължителност поне няколко години. Обемната активност на радона, на която съответстват референтните стойности при 1 година облъчване е от 19 до 164 Bq.m⁻³ (Таблица II.4). Резултатите от сравнението подкрепят твърдението, че компакт-дисквият метод дава точни резултати и може да регистрира наличие на радонов проблем дори при кратки времена на облъчване.

	I_V , kBq.m ⁻³ .h		A_V , Bq.m ⁻³ при облъчване	
	CD-метод	Референтна	1 година	5 години
Група 1	321 ± 230	330	37.6	7.5
Група 2	< 210	165	18.8	3.8
Група 3	1188 ± 320	1436	164	32.8

Таблица II.4: Резултати от международно сравнение по измерване на радон във въздух. Дисквите са облъчени в три групи при три различни интегрирани обемни активности - дадените референтни стойности. Отляво на тях са представени, получените от нас стойности. В последната колонка са дадени стойностите на обемната активност, на която съответстват референтните при облъчване 1 и 5 години.



Фигура II.6: Резултати от ретроспективни измервания на радон в жилища в София, района на Бухово и Елешница, получени чрез СД-метода.

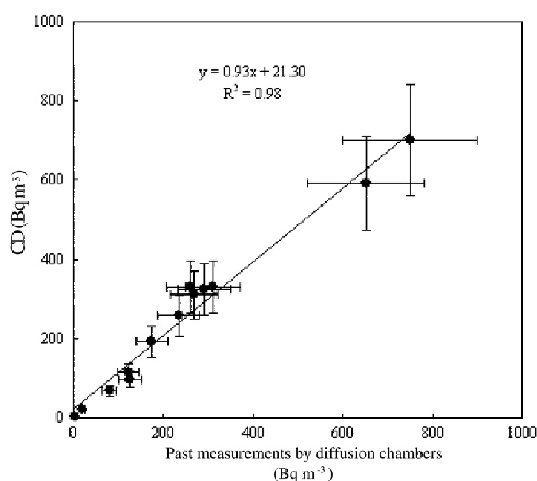
II.4.2 Резултати от реални измервания

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

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

Таблица II.5: Средна стойност и медиана на обемните активности на радона в жилища в София, Варна и Елешница. В скоби е даден и 95 % доверителен интервал на медианата.

ретроспективни измервания с дискове в трите района, от които са събрани най-много дискове (София, Варна и Елешница) са дадени в Таблица II.5. Получената средна стойност за София и Варна е близка до средната за света стойност от $40 Bq.m^{-3}$ [27]. От друга страна, повечето проведени ретроспективни измервания в село Елешница и района на град Бухово дават резултат за обемната активност на радона, надвишаващ референтното ниво от $100 Bq.m^{-3}$, препоръчвано от Световната Здравна Организация [2] (виж Фиг. II.6). Повишена обемна активност на радона (над $500 Bq.m^{-3}$) бе открита в детската градина в село Горни Богров. По проект на Д. Пресиянов бе изградена активна противорадонова инсталация и обемната активност на радона бе свалена до около $40 Bq.m^{-3}$.



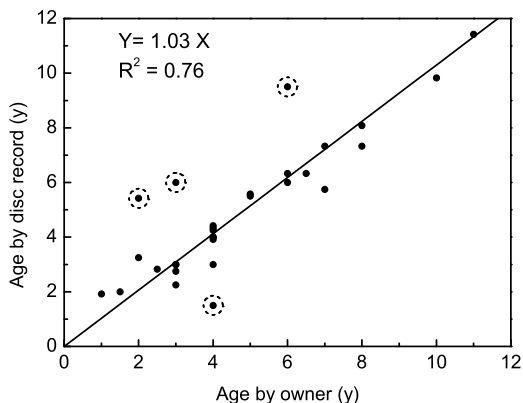
Фигура II.7: Сравнение между обемните активности на радона, получени чрез ретроспективни измервания с дискове и проспективни измервания с дифузионни камери, правени в миналото. Правата е получена по метода на най-малките квадрати. Наблюдава се много добра корелация и ъглов коефициент близък до единица.

II.4.2.1 Сравнение с резултати, получени чрез метода на дифузионните камери.

За 13 от изследваните обекта, намиращи се в с.Елешница, бе възможно резултатите от проведените ретроспективни измервания да се сравнят с тези от проспективни измервания, проведени в миналото на същите места. Единадесет от тези обекти са жилища, а два са дворове. В дворовете дисковете са били окачени по дърветата като предпазна мярка срещу птиците. Измерванията, проведени в миналото са кумулативни измервания чрез дифузионни камери. Дифузионните камери са проследими до международен стандарт за ^{222}Rn [28]. За сравнението бяха избрани такива дискове, които вече са били на даденото място по времето на измерванията с дифузионните камери. Беше проверено, че в никое от единадесетте жилища не е правен ремонт или промени в климатичната инсталация от придобиването на дисковете. Сравнението е показано на Фиг.II.7. Резултатите показват много добро съответствие между обемните активности, определени при ретроспективни измервания с дискове и при проспективни измервания с дифузионни камери.

II.4.2.2 Датиране на дисковете

Най-честият подход за датиране на дисковете е базиран на информация, предоставена от собствениците им. За да се оцени вероятността за допускане на грешки при този субективен подход, беше тестван алтернативен начин за датиране. При него беше използвана или датата на производство на диска или най-старата дата на запис върху диска. Този подход не беше приложим за близо 1/2 от изследваните 65 диска, поради липсваща дата на производство или фиктивна дата на записите, което също крие възможности за грешка. Затова той и „субективният“ подход бяха сравнени (Фиг.II.8). Резултатите (представени в литература [29]) показват, че няма систематични отклонения между информацията за възрастта, получена по двата метода и че в повечето случаи оценките съвпадат в рамките на 10 %.



Фигура II.8: Сравнение между времето на облъчване на дисковете, оценено от собствениците им и това, определено на база на датата на производство/запис. Правата е получена по метода на най-малките квадрати, като са използвани всички представени данни. Оградени са точките, при които двата типа датирание се разминават значително.

Въпреки това, при 4 от използваните 32 диска се наблюдават значими отклонения.

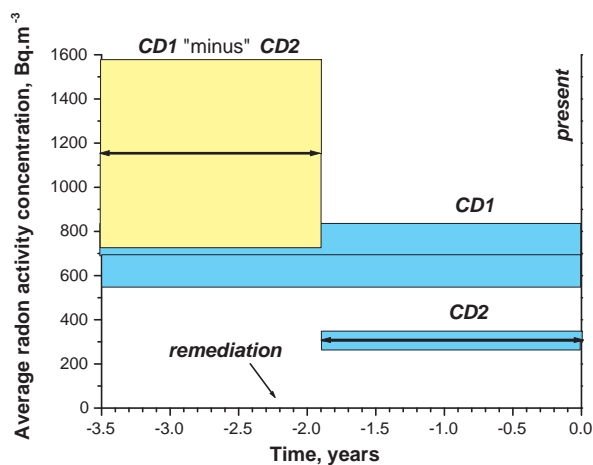
II.4.2.3 Възможност за проследяване на резки промени в обемната активност на радона във времето.

Разминаващи се резултати за обемната активност на радона бяха получени при изследване на една от обществените сгради - лаборатория, в която се провеждат и радиационни измервания [30]. В тази сграда при предходни изследвания са установени високи обемни активности на радона, които са водели и до висок фонов сигнал при провеждането на радиационните измервания. Анализът на диск на възраст 3.5 години (CD1) доведе до резултат около два пъти по-голям от този, получен при анализа на диск, съхраняван в същата стая, на възраст 1.9 години (CD2). Оказа се, че преди вторият диск да бъде купен, в сградата са били взети мерки за снижаване на нивото на радона чрез поставяне на изолираща подова настилка. Разликата между интегрираните по времето обемни активности, получени чрез CD1 и CD2 е равна на интегрираната обемна активност на радона за периода между закупуването на CD1 и CD2. Тогава средната обемна активност преди поставянето на настилката се дава с:

$$\overline{A_V}(-T_{\text{exp}}^1, -T_{\text{exp}}^2) = \left(\frac{n_{\text{net}}^1}{CF^1} - \frac{n_{\text{net}}^2}{CF^2} \right) \frac{1}{T_{\text{exp}}^1 - T_{\text{exp}}^2}, \quad (\text{II.3})$$

където индексът 1 се отнася за CD1, а 2 за CD2. За конкретния случай, този подход е илюстриран на Фиг. II.9. По този начин е оценено, че настилката е довела до $3,7 \pm 1,4$ пъти снижаване на обемната активност на радона в стаята. За сравнение, направените проспективни измервания са показали снижаване от около 3 пъти.

Този пример илюстрира възможността компакт-дисковият метод да регистрира съществени промени в нивата на радон, настъпили в миналото. Затова при жили-



Фигура II.9: Оценка на средната обемна активност на радона за минал период време чрез използване на два диска с различна възраст. Посочен е момента, в който в стаята е поставена изолираща настилка (преди закупуването на CD2). Запълнените области маркират оценените обемни активности $\pm 1\sigma$.

ща/сгради, в които са правени съществени реконструкции и ремонти е препоръчително да се анализират два различни диска - единият, придобит поне няколко години преди реконструкцията, а другият скоро след нея. Очевидно е, че неопределеността на $\overline{A_V}(-T_{\text{exp}}^1, -T_{\text{exp}}^2)$ ще е толкова по-голяма, колкото е по-малка разликата $T_{\text{exp}}^1 - T_{\text{exp}}^2$. Например ако $T_{\text{exp}}^1 = 10$ у и $T_{\text{exp}}^2 = 5$ у и двете са известни с неопределеност 10 %, то неопределеността на $\frac{1}{T_{\text{exp}}^1 - T_{\text{exp}}^2}$ ще бъде 30 %. Следователно, прилагането на тази техника изисква дискове с възможно най-голяма разлика във възрастта, които да бъдат датирани максимално точно.

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

II.5 Основни резултати и изводи от изследванията в Глава III от дисертацията

В глава III са представени изследванията върху компакт-дискския метод, проведени в лаборатория „Дозиметрия и лъчезащита“ в Софийския университет. При тях са реализирани едни от първите реални измервания чрез CD/DVD-та. С цел развиване на метода за масово прилагане, е разработен алгоритъм за автоматично броене на електрохимично ецвани трекове от алфа-частици в CD/DVD-та. Показано е, че алгоритъмът се справя успешно в широк диапазон от плътности на трековете (до 2000 tr.cm^{-2}), като брой с една и съща ефективност нови дискове и стари, надраскани дискове. Демонстрирано е, че автоматичното броене с програмата DGTrack е по-бързо, не натоварва оператора и води до по-ниска статистическа неопределеност на оценената плътност на трековете. Алгоритъмът

и валидирането му чрез сравнение с визуално броене с оптичен микроскоп са публикувани в [31, 32].

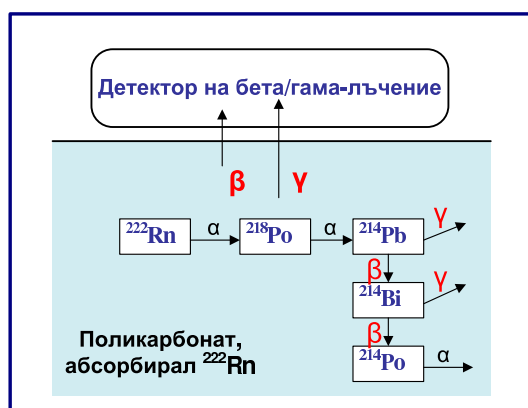
В глава III е представена и разработената процедура за калибриране на дискове, публикувана в [33]. Описан е начинът за оценка на калибровъчния коефициент и неговата неопределеност. Представени са резултати от проведени калибрирания. Показано е, че между индивидуалните калибровъчни коефициенти на дисковете се наблюдават разлики, които в отделни случаи достигат до 45 %. Препоръчан е следният подход: след обработка на диска да се направи първоначална оценка на средната обемна активност на ^{222}Rn на базата на среден калибровъчен коефициент ($CF_{av} = 0.020 \pm 0.003 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{kBq}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$). В случай, че обемната активност не надвишава $50 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ е допустимо тази оценка да се използва, за да се спести време при мащабна кампания. В случаите, когато ретроспективните измервания се провеждат с цел епидемиологични проучвания е коректно всеки от дисковете да се подложи на индивидуално *a posteriori* калибриране. При *a posteriori* калибриране типичната неопределеност на обемната активност на ^{222}Rn е оценена на 20 %, а при използване на среден калибровъчен коефициент на 26 % (без прилагане на температурна корекция). Направена е и оценка на грешката, която може да се допусне, поради факта, че фоновата плътност в дисковете е по правило неизвестна - при диск облъчен 5 години обемната активност на ^{222}Rn може да се подцени с до $13 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$. За да се избегне надценяване, е препоръчително да се използват по-стари дискове и/или да се обработват няколко диска. Част от резултатите от калибрирането са публикувани в [34].

В глава III са представени резултати от участието ни в международно сравнение по измерване на ^{222}Rn във въздух чрез компакт-дисксовия метод. Получените от нас резултати съвпадат с референтната стойност в рамките на 17 %, при облъчване съответстващо на средна обемна активност от $164 \text{ Bq} \cdot \text{m}^3$ за една година или $41 \text{ Bq} \cdot \text{m}^3$ за четири години. Освен това, е проведено и сравнение в реални условия между компакт-дисксовия метод и метода на дифузионните камери (проследим до международен радонов стандарт). Резултатите, получени по двата метода, показват много добро съвпадение и са публикувани в [35]. В глава III са представени и обобщени резултати от над 400 измервания в реални сгради. Част от тях са проведени в рискови райони и са открити сгради с радонов проблем. Направено е сравнение между различни методи за датиране на дисковете, публикувано в [35]. Предложен е и подход за проследяване на резки промени в обемната активност на ^{222}Rn чрез използване на два диска с различна възраст, представен в [29].

III. Измерване на ^{222}Rn във води чрез абсорбция в поликарбонати. Пилотни измервания на ^{226}Ra .

Втората основна цел на дисертационната работа е да се изследват възможностите за измерване на ^{222}Rn във води чрез абсорбция в поликарбонати. Както и при измерванията във въздух, основната идея бе да се използва фактът, че активността на абсорбирания в поликарбоната ^{222}Rn и получените от него ДПП е свързана с външната обемна активност на радона. На тази база бяха предложени два различни подхода за измерване на ^{222}Rn във води. При всеки от двата подхода първата стъпка представлява облъчване на поликарбонатен образец директно в изследваната вода. При първия (експресен) подход след края на облъчването, образецът се измерва чрез подходящ детектор, който регистрира бета или гама-лъчение. При това измерване се регистрира бета/гама-лъчението на краткоживеещите дъщерни продукти на радона ^{214}Pb и ^{214}Bi (схематично представено на Фиг. III.1). Същият подход се прилага и за измерване на радон в почвен газ [34, 35]. Освен това, бета/гама-измерванията на поликарбонатни образци могат да се прилагат и за измерване на други радиоактивни благородни газове (^{85}Kr и ^{133}Xe) във въздух [36]. В Глава IV от дисертацията са представени първите изследвания, с които е проверена възможността, този подход да се прилага за измервания на радиоактивни благородни газове във вода (конкретно на ^{222}Rn). Впоследствие бе разработен и метод за измерване на ^{85}Kr във вода, базиран на абсорбция в поликарбонати и бета или гама-измервания [37]. При втория подход след края на облъчването се проявяват трековете от алфа-частици, формирани на дадена дълбочина под повърхността на поликарбонатния образец (детектор). Аналогично на разгледания в предната глава компакт-дисков метод, определянето на плътността на трековете позволява да се оцени интегрираната по времето на облъчване обемна активност на радон във водата.

В Глава IV от дисертацията са представени методите за измерване на ^{222}Rn във води чрез абсорбция в поликарбонати, разработени въз основа на горните два подхода. Представени са калибровъчните експерименти, чрез които за всеки от методите е установена връзката между сигнала и обемната активност на радон във водата. Представени



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

са и пилотни измервания на ^{226}Ra във води, реализирани чрез ецване на алфа-трекове в облъчени поликарбонати. Оценени са възможностите на всеки от методите и са сравнени с тези на други методи за измерване на $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ във вода.

III.1 Метод за измерване на ^{222}Rn във води чрез абсорбция в поликарбонати и бета/гама-измервания.

Разработеният метод включва облъчване на поликарбонатния образец (директно във водозточника или във водна проба), измерване на образца чрез общо бета-броене или гама-спектрометрия и оценка на обемната активност на ^{222}Rn във водата чрез калибровъчен коефициент. От общи съображения е ясно, че сигналът при измерване на поликарбонатен образец зависи от продължителността на облъчването и времето между края на облъчването и момента на измерването (T_{desorp} -наричано още време за десорбция). Резултатите от експерименталното изследване на тези зависимости за използваните поликарбонатни пластинки с дебелина $L = 300 \mu\text{m}$ са представени в дисертацията. Изследванията показваха, че при измерване на пластинки, облъчени между 41 и 66 часа сигналът е практически еднакъв. Освен това, бе установено, че в интервала между 4-тия и 30-тия час след края на облъчването сигналът от пластинките (и съответно активността на ДПР в тях) спада експоненциално [38]. Времето, за което активността намалява наполовина ($T_{1/2\text{eff}}$) бе оценено на 32.9 ± 0.9 часа. Това позволява да се приложи корекция за привеждане на сигнала към момента на прекратяване на облъчването. Тази корекция е необходима, тъй като измерванията не могат да се провеждат в точно един и същ определен момент. Корекцията към нетния сигнал (c_{net}), получен в момент t след края на облъчването, се прилага по следния начин:

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

III.1.1 Калибриране

При калибрирането поликарбонатни пластинки бяха облъчени във водни проби с различна обемна активност на ^{222}Rn за 48 часа при температура $20 \pm 2^\circ\text{C}$ и след облъчването бяха измерени чрез общо бета-броене и гама-спектрометрия. При общото бета-броене една пластинка с площ 8.75 cm^2 бе измерена на разстояние около 7 mm от ГМ-брояч в установка за измерване на ниски активности УМФ-1500. При гама-спектрометричните измервания шест детектора с площ 8.75 cm^2 бяха поставени един върху друг върху капачката на детектор от свръх чист германий (с относителна ефективност 24,9 % и разделителна способност 1,9 keV за гама-линията на ^{60}Co с енергия 1332,5 keV). Калибровъчните коефициенти (CF^w) за всеки от методите на измерване бяха оценени като:

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

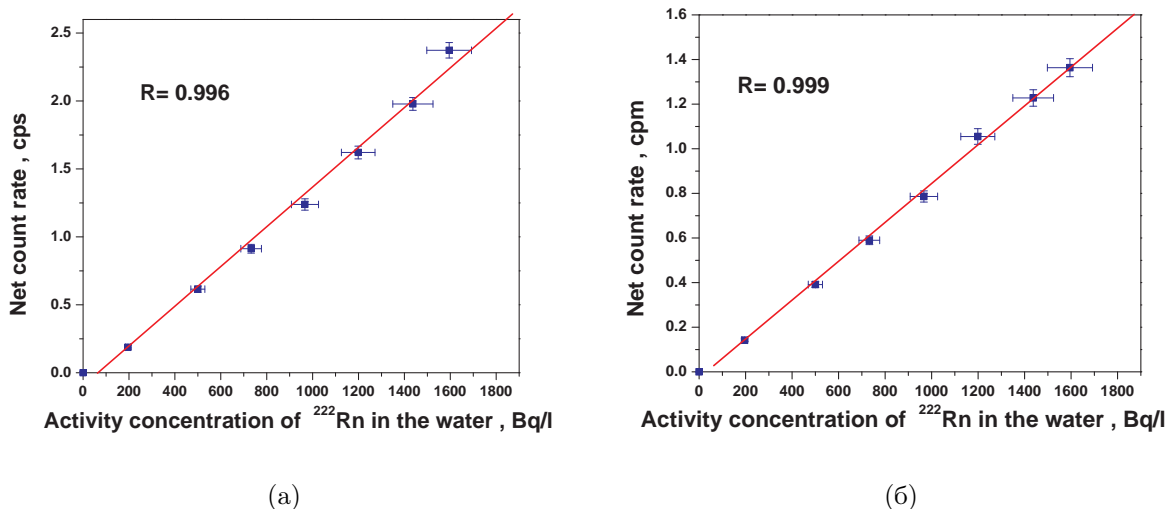
където $c_{\text{net}}(T_{\text{desorp}} = 0)$ е получения нетен сигнал, приведен към момента на прекратяване на облъчването, а A_V^w е началната обемна активност на ^{222}Rn във водната проба.

На Фиг. III.2 са представени зависимостите между скоростите на броене в началния момент и началната обемна активност на ^{222}Rn във водата, в която е бил облъчен всеки детектор. И при общото бета-броене, и при гама-спектрометричните измервания се наблюдава много добра корелация. С помощта на оценените калибровъчни коефициенти за двата метода на измерване е оценена минималната детектуема обемна активност ($MDAC$) на ^{222}Rn - представени в Таблица III.1. Подходът за оценката на $MDAC$ е представен в Приложение Б от дисертацията. Важно е да се отбележи, че дадените в таблицата стойности за $MDAC$ са на базата на нивото за детектиране и в този смисъл представляват предварителни оценки за минималната обемна активност на радона във водата, която би довела до сигнал, статистически различим от фоновия.

Метод на измерване	CF^w , cps.Bq $^{-1}$.l	$MDAC$, Bq.l $^{-1}$
Общо бета-измерване	$(1.46 \pm 0.23) \times 10^{-3}$	11.5
Гама-спектрометрия - 295 keV	$(5.62 \pm 0.87) \times 10^{-4}$	23.4
Гама-спектрометрия - 352 keV	$(8.7 \pm 1.3) \times 10^{-4}$	11.9

Таблица III.1: Калибровъчни коефициенти и $MDAC$, за поликарбонатни пластинки с дебелина $L = 300 \mu\text{m}$, облъчени във водни проби за 48 часа при $T = 20^\circ\text{C}$, измерени при описаната в текста геометрия. Посочените неопределености на калибровъчните коефициенти (на ниво 1σ) включват неопределеността на съответния ъглов коефициент и неопределеността на обемната активност на водата, използвана за облъчването. Оценките на $MDAC$ са направени при време за измерване на пластинките 1 h и на фона 10 h при общи бета-измервания и 100 h при гама-спектрометрия. Нивото на достоверност е 95%.

Получените калибровъчни коефициенти, както и оценените стойности за $MDAC$, са валидни само тогава, когато при измерването се спазват същите условия като при про-



Фигура III.2: Зависимост на между скоростите на броене в началния момент при измерване на поликарбонатни пластинки от началната обемна активност на ^{222}Rn във водата, в която са били облъчени. Показани са правите (получени по метода на най-малките квадрати), описващи зависимостта за всеки от случаите и са дадени коефициентите на корелация R . Ъгловите коефициенти на правите имат смисъл на калибровъчни коефициенти. При измерване чрез: а) общо бета-броене; б) гама-спектрометричен анализ на линията на ^{214}Pb с енергия 352 keV. Подобна зависимост е получена и за линията на ^{214}Pb с енергия 295 keV и е представена в дисертацията.

веденото калибриране, т.е. детекторите са пластинки с дебелина $L = 300 \mu\text{m}$, облъчването продължава 48 часа, обемната активност на ^{222}Rn във водата спада според закона за радиоактивно разпадане, температурата е $T = 20^\circ\text{C}$, измерването се провежда в интервала от 4 до 30 часа след облъчването и е с продължителност до 1-2 часа. В случай, че условията се различават от гореописаните, калибровъчният коефициент може да се коригира, с помощта на теоретичния модел, описващ сорбцията и десорбцията на ^{222}Rn в поликарбонати [39]. Принципът на корекцията е показан в Приложение А.2 от дисертацията.

III.1.2 Метод за измерване на ^{222}Rn и ^{226}Ra във води чрез абсорбция на радон в поликарбонати и ецване на трекове от алфа-частици

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

$$CF^{wtr}(T, d) = \frac{n_{\text{net}}(T, d)}{I_V}, \quad (\text{III.3})$$

където $n_{\text{net}}(T, d)$ е нетната плътност на трековете на съответната дълбочина, а I_V е интегрираната по времето на облъчване обемна активност на радона във водата. За разлика от случая на облъчване във въздух бе разгледана възможността при облъчване във вода да се използва плътността на трековете на дълбочини в интервала $0 \div 70 \mu\text{m}$. Целта бе да се потърси оптимална дълбочина d_{opt} , на която стойността на CF^{wtr} е по-голяма от тази при $80 \mu\text{m}$, а приносът на ДПР, намиращи се във водата или поленнали по повърхността е пренебрежим. Тъй като досега плътността на трековете в интервала $0 \div 70 \mu\text{m}$ не бе изследвана нито експериментално, нито теоретично, бе разработен теоретичен модел, описващ дълбочинната зависимост на плътността на трековете при облъчване във вода [40]. Разработеният модел е подробно представен в Глава IV от дисертацията.

III.1.2.1 Модел на дълбочинното разпределение на плътността на трековете в поликарбонатни детектори, облъчени във вода

Когато ^{222}Rn е директно разтворен от водата, а не е генериран от разтворен в нея ^{226}Ra , неговата активност е типично много по-голяма от тази на останалите естествени нуклиди, които са разтворени от водата. Затова в случая на измервания на радон се разглеждат три алфа-излъчващи нуклида, на които се дължат трековете, формирани в детекторите - ^{222}Rn , ^{218}Po и ^{214}Po (индексирани с $i = 1, 2, 3$). Решението за плътността на трековете на дълбочина z , дължаща се на трите нуклида може да бъде представено в обща форма:

$$n_m(z) = \sum_{i=1}^3 n_m^i(z) = \frac{KI_{\text{out}}L_D}{2 \cosh\left(\frac{L}{2L_D}\right)} \cosh\left(\frac{z - \frac{L}{2}}{L_D}\right) \sum_{i=1}^3 Q_m^i(z), \quad (\text{III.4})$$

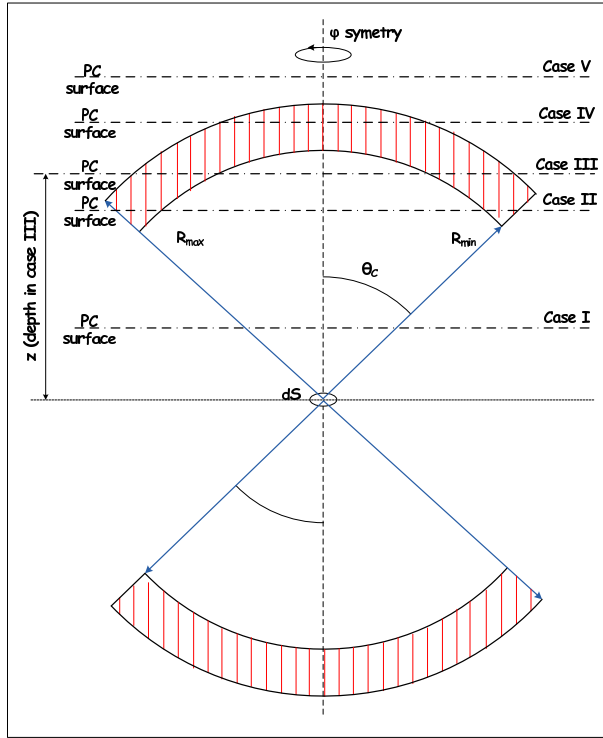
където $m = I, II, III, IV, V$ и неговите стойности съответстват на случаите, показани на Фиг. III.3. В явен вид:

$$Q_I^i = \frac{L_D}{R_2^i} \left(e^{-\frac{R_2^i}{L_D}} - e^{-\frac{R_2^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) - \frac{L_D}{R_1^i} \left(e^{-\frac{R_1^i}{L_D}} - e^{-\frac{R_1^i \cos \theta_c}{L_D}} \right), \quad (\text{III.5})$$

$$Q_{II}^i = Q_I^i + e^{\frac{z}{L_D}} \left(\frac{z}{R_1^i} - \cos \theta_c \right) - \frac{L_D}{R_1^i} \left(e^{\frac{z}{L_D}} - e^{\frac{R_1^i \cos \theta_c}{L_D}} \right), \quad (\text{III.6})$$

$$Q_{III}^i = Q_I^i + \frac{L_D}{R_2^i} \left(e^{\frac{z}{L_D}} - e^{\frac{R_2^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) - \frac{L_D}{R_1^i} \left(e^{\frac{z}{L_D}} - e^{\frac{R_1^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) + e^{\frac{z}{L_D}} \left(\frac{z}{R_1^i} - \frac{z}{R_2^i} \right), \quad (\text{III.7})$$

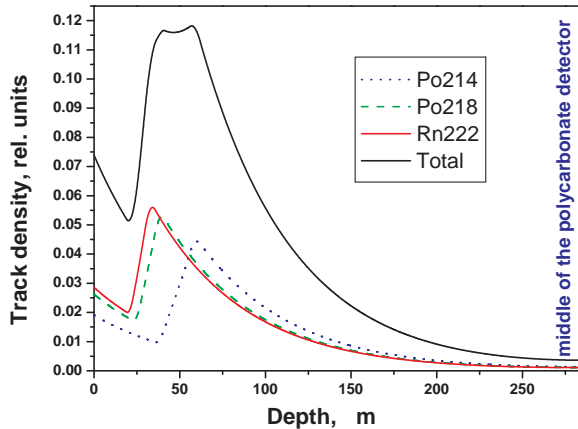
$$Q_{IV}^i = Q_I^i + \frac{L_D}{R_2^i} \left(e^{\frac{z}{L_D}} - e^{\frac{R_2^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) - \frac{L_D}{R_1^i} \left(e^{\frac{R_1^i}{L_D}} - e^{\frac{R_1^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) + e^{\frac{z}{L_D}} \left(1 - \frac{z}{R_2^i} \right), \quad (\text{III.8})$$



Фигура III.3: Илюстрация на различните обеми по които се интегрира активността при различна дълбочина z , на която се намира повърхността Δs , върху която определяме формираните трекове. Шрихованата област е областта, от която алфа-частици от дадения нуклид могат да формират трекове върху Δs , ако тя попада в обема на поликарбоната. Когато част от тази област попада извън поликарбоната, обема на частта над повърхността се изключва. Според формата на областта, попадаща вътре в детектора, се разграничават пет случая. Във всеки от случаите има сферична симетрия, тъй като Δs е успоредна на повърхността.

$$Q_V^i = Q_I^i + \frac{L_D}{R_2^i} \left(e^{\frac{R_2^i}{L_D}} - e^{\frac{R_2^i \cos \theta_c}{L_D}} \right) - \frac{L_D}{R_1^i} \left(e^{\frac{R_1^i}{L_D}} - e^{\frac{R_1^i \cos \theta_c}{L_D}} \right). \quad (\text{III.9})$$

Изразът за $m=V$ (и като част от него изразът за $m=I$), който е валиден при $z \geq 65 \mu\text{m}$, е получен в [41]. Другите изрази, описващи плътността на трековете на по-малки дълбочини, са получени за целите на настоящото изследване и са представени в [40]. Освен това в Глава IV от дисертацията са представени изрази, с които може да се оцени приноса към плътността на трековете на ДПР, намиращи се във водата или полепнали по повърхността на поликарбоната.



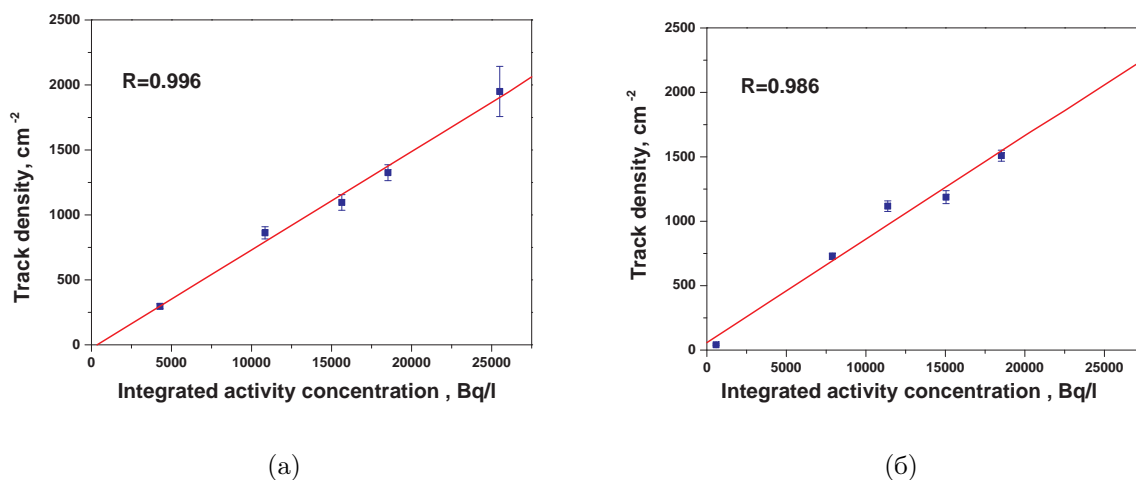
Фигура III.4: Профил на плътността на трековете (относителни единици) в поликарбонатни детектори с дебелина $L = 570 \mu\text{m}$ (например DVD), облъчени във вода при температура 21° (при тези условия са проведени калибровъчните експерименти, описани в следващата част). Представени са парциалните плътности на трековете, формиращи от трите алфа-лъчителя и пълната плътност на трековете. Профилът е симетричен спрямо средата на детектора.

Дълбочинно разпределение на парциалната плътност на трековете, дължаща се на всеки от трите разглеждани алфа-лъчителя, е показано на Фиг. III.4. Плътността на трековете се получава след събиране на трите компоненти и нейната зависимост от дълбочината също е показана на Фиг. III.4. Основните резултати и изводи от прилагането на гореописания модел са следните:

- Приносът на източници във водата към плътността на трековете може да се пренебрегне. Направената оценка показва, че плътността на трековете на повърхността на детектора, дължаща се на ДПР във водата, е до 2 % от тази, дължаща се на абсорбирания радон и ДПР (при температура на облъчване 25°C). Дори във водата да са разтворени и други алфа-излъчващи нуклиди със сравними активности, техният принос би бил от същия порядък.
- Профилът на плътността на трековете в поликарбонатни детектори с дебелина по-голяма от 500 μm е един и същ за дълбочини до 150 μm (на практика, ецвания извън този интервал се прилагат по изключение). В дисертацията са показани профили, получени за поликарбонати с различни дебелини.
- При температура 21° максимум на плътността на трековете в пластинки с дебелина $L = 570 \mu\text{m}$ (DVD-та) се достига при дълбочина 57 μm под повърхността (Виж Фиг. III.4). Около максимума съществува сравнително широк интервал, в който плътността на трековете (и следователно калибровъчния коефициент) са почти постоянни. Чрез предложения теоретичен модел е изследвана ширината на това квази-плато като функция на температурата на облъчване. В Глава IV от дисертацията са илюстрирани профилите на плътността на трековете при различни температури. Направен е изводът, че при температури в интервала от 5° до 38° оптималната дълбочина, която трябва да се цели при ецване, е 55÷56 μm . Тогава, отклонения в рамките на 2 μm ще доведат до разлика в калибровъчния коефициент по-малка от 2.5 %. Наличието на плато около максимума на плътността на трековете е предимство на метода. Трябва да се има предвид, обаче, че при дълбочини до 62 μm е възможен принос на отложените по повърхността ДПР.

III.1.2.2 Калибриране и минимална детектеруема обемна активност

На база на резултатите от моделирането на дълбочинния профил на плътността на трековете бе избрано калибрирането да се проведе за три различни дълбочини - на 60 μm , на 80 μm и на повърхността. Дълбочината 60 μm беше избрана, тъй като на тази дълбочина



Фигура III.5: Зависимост между плътността на трековете и интегрираната обемна активност на ^{222}Rn , при която е облъчен всеки детектор. Дадени са експерименталните точки и техните статистически неопределености. Правите са получени по метода на най-малките квадрати, като са дадени са коефициентите на корелация R . Трековете са ецвани на: а) дълбочина $80\ \mu\text{m}$; б) повърхността.

плътността на трековете е близка до максималната, като евентуалният принос на полепналите по повърхността нуклиди е по-малък от този в интервала $52.5 \div 58.5\ \mu\text{m}$. Дълбочината $80\ \mu\text{m}$ беше избрана, тъй като на тази дълбочина е изключена възможността за принос на нуклиди във водата или полепнали по повърхността на детектора, включително и на ^{220}Rn и неговите продукти. Избрано бе да се проведе и калибриране на повърхността, тъй като разработеният модел показва, че плътността на трековете на повърхността е близка до тази на $80\ \mu\text{m}$ и също е неповлияна от полепнали по повърхността ДПР. Освен това, при ецване на повърхността не се налага предварително преецване и това прави обработката на дисковете по-бърза и лесна. От друга страна, недостатък на ецването на повърхността е по-високата фонова плътност в детекторите в сравнение с тази в дълбочина, която би довела и до по-висока минимална детектеруема активност на метода. В дисертацията е показано, че поликарбонатни детектори с ниска фонова плътност, могат да се приготвят от DVD-та като се използва вътрешната повърхност на дисковете, съставлящи DVD-тата. Всички детектори, използвани в описаните по-долу експерименти са приготвени от DVD-та и са с дебелина приблизително $L = 570\ \mu\text{m}$.

При първата серия експерименти поликарбонатни детектори бяха облъчени във вода при различна интегрирана обемна активност на ^{222}Rn . Зависимостта между плътността на трековете и интегрираната обемна активност на ^{222}Rn , при която са облъчени детекторите е показана на Фиг. III.5а за групата, ецвана на $80\ \mu\text{m}$ и на Фиг. III.5б за групата, ецвана на повърхността (подобна зависимост е получена и за групата, ецвана на $60\ \mu\text{m}$ и е представена в дисертацията). И в трите случая се наблюдава много добра корелация. Това позволява определянето калибровъчните коефициенти CF^{wtr} за всяка от

Дълбочина под повърхността, μm	CF^{wtr} $\text{cm}^{-2} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{l}^1 \cdot \text{h}^{-1}$	$MDAC$, $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$
80	0.076 ± 0.005	0.073
60	0.096 ± 0.006	0.058
0	0.080 ± 0.009	0.069

Таблица III.2: Калибровъчни коефициенти и $MDAC$ при различни дълбочини на ецване на поликарбонатни детектори, облъчени във вода при температура 21°C . Въпреки че са определени за детектори с дебелина $L = 300 \mu\text{m}$, облъчени при експоненциално намаляваща активност, оценките са валидни и за по-дебели полакарбонати, облъчени при друг режим на активността. Посочените неопределености на калибровъчните коефициенти (на ниво 1σ) включват неопределеността на съответния ъглов коефициент и неопределеността на обемната активност на водата, използвана за облъчването. $MDAC$ (за 95 % ниво на достоверност) е оценена при фонова плътност 2.0 cm^{-2} , ецвана площ на детекторите 4 cm^2 и при време на облъчване 30 дни.

горните дълбочини. Калибровъчни коефициенти за всяка от трите дълбочини са представени в Таблица III.2. В дисертацията са представени и калибровъчни коефициенти за други две дълбочини - $70 \mu\text{m}$ и $86 \mu\text{m}$. Получените резултати ясно показват, че ецването на поликарбонатни детектори, облъчени във вода може да се използва за количествени измервания на обемната активност на ^{222}Rn във водата.

В Таблица III.2 са дадени и оценките за Минималната детектеруема обемна активност ($MDAC$) на ^{222}Rn във водата, получени с помощта на определените калибровъчни коефициенти, при на облъчване 30 дни. Подходът за оценка на $MDAC$ е представен в Приложение Б.3 от дисертацията. Най-ниски са $MDAC$ за ецване на $60 \mu\text{m}$. Въпреки това, когато е възможно във водата да има ^{220}Rn , детекторите трябва да бъдат ецвани на дълбочина поне $80 \mu\text{m}$. Оценките за $MDAC$ са значително по-ниски от стойността $100 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$, която е референтното ниво за обемна активност на ^{222}Rn във вода, препоръчано от Комисията на Европейската Общност. Освен това, $MDAC$ са по-ниски от българската норма за ^{226}Ra в питейна вода е $0.15 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ [18]. Тогава, методът би могъл да се прилага и за измервания на ^{226}Ra във води за целите на радиационната защита. Пилотни измервания на ^{226}Ra във вода са представени в следващата част.

III.1.2.3 Резултати от проведени измервания

За да се провери дали методът може да бъде приложен за измервания на обемната активност на ^{226}Ra във вода, бяха проведени пилотни експерименти. Два детектора с площ 12 cm^2 , приготвени от DVD-та, бяха облъчени в две водни проби с различна обемна активност на ^{226}Ra . Преди облъчването радонът бе премахнат от водата чрез интензивно барботиране с въздух. По този начин по време на облъчването ^{222}Rn във водата се получава само от разпадането на ^{226}Ra . Тогава, интегрираната обемна активност на ^{222}Rn във водата (I_{Vout}) за време на облъчване T_{exp} е свързана с обемната активност на ^{226}Ra (A_{Ra})

Номер на пробата	Обемна активност на ^{226}Ra , Bq.l^{-1}	
	Чрез облъчване на поликарбонати	Чрез гама-спектрометрия на водата
1	0.95 ± 0.10	0.90 ± 0.09
2	12.0 ± 1.1	9.9 ± 1.0

Таблица III.3: Обемна активност на ^{226}Ra в две водни проби, оценена чрез облъчване и ецване на поликарбонатни пластинки и чрез гама-спектрометрия. Посочени са неопределеностите на ниво 1σ .

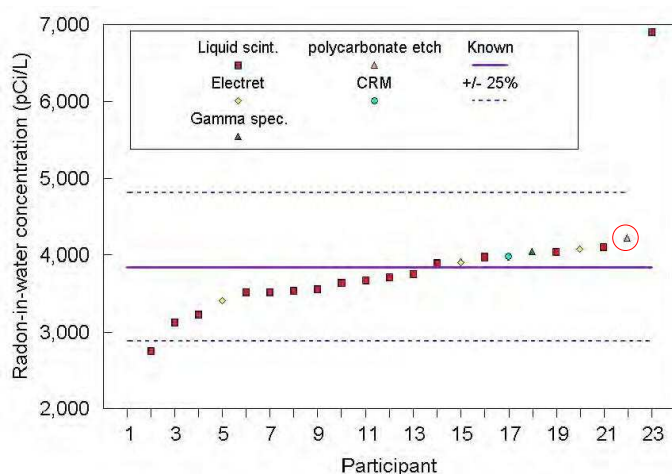
по следния начин:

$$I_{\text{Vout}} = A_{\text{Ra}} \left(T_{\text{exp}} - \frac{1 - e^{-\lambda_1 T_{\text{exp}}}}{\lambda_1} \right). \quad (\text{III.10})$$

Облъчванията бяха направени в бурканчета с обем около 95 ml и продължиха 30 дни. След края им, детекторите бяха оставени да дегазират за един месец и бяха ецвани до 80 μm , а след това ецвани по описаната процедура. Температурата по време на облъчването и дегазирането беше $14 \pm 2^\circ\text{C}$. Тъй като условията на облъчване се различаваха от тези описани в III.1.2.2, беше проведено ново калибриране чрез облъчване на детектори при температура 14°C , в идентични бурканчета, съдържащи вода с известна обемна активност на радон. Полученият калибровъчен коефициент за дълбочина на ецване 80 μm беше $0.051 \pm 0.003 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{l} \cdot \text{h}$. Разликата между този коефициент и дадения в Таблица III.2 вероятно се дължи на разлики в условията на облъчване (по-ниската температура и по-малкия обем на водата). Обемната активност на ^{226}Ra в двете проби, оценена чрез ецване на облъчените поликарбонатни детектори, е дадена в Таблица III.3.

Получените резултати бяха сравнени с резултати от измервания по независим метод - обемната активност в същите проби бе оценена и чрез гама-спектрометричен анализ, при който бе използван детекторът от свръх чист германий, описан по-горе. Преди измерването Проба 1 бе прекоцентрирана до 39 пъти по-малък обем. В проба 2 бяха детектирани ^{235}U , ^{238}U и някои от продуктите им, което доведе до по-високи неопределености на резултата, тъй като линията на ^{226}Ra с енергия 186 keV е припокрита от линия на ^{235}U . Всяко от измерванията на пробите продължи поне 2 дни. Резултатите от гама-спектрометричния анализ също са представени в Таблица III.3. Резултатите, получени по двата метода се съгласуват добре в рамките на неопределеностите. Трябва да се отбележи, че измерванията чрез поликарбонатни детектори не изискваха концентриране на пробите, нито корекции за наличие на други нуклиди.

Предложеният тук метод бе използван и при международно сравнение по измервания на радон във води, организирано през 2009г. от Nuclear Chemistry Laboratory, New York State Department of Health [42]. Организаторите на сравнението ни изпратиха водна проба с обем 42 ml в шишенце, в която източникът на радон е филтър импрегни-



Фигура III.6: Резултати от проведеното международно сравнение по измервания на радон във води. От 23 участника, 21 са дали резултат в рамките на 25 % от референтната стойност, като повечето участници са използвали течно-сцинтилационно броене. Резултатът получен от нас чрез облъчване на поликарбонати е ограден. Фигурата е представена в литература [42].

ран с ^{226}Ra . Филтърът е опакован в полиетилен, който пропуска генерирания ^{222}Rn , но не позволява на радия да се разтвори във водата. Поликарбонатен детектор, приготвен от DVD бе облъчен директно в шишенцето без да се отстранява филтъра. Облъчването бе с продължителност 40 часа и след това трековете бяха проявени на дълбочина $80\ \mu\text{m}$. За оценка на обемната активност бе използван калибровъчният коефициент за дълбочина $80\ \mu\text{m}$ (даден в Таблица III.2, като бе приложена корекция за малък обем на пробата (подходът за оценка на корекцията е представен в [43]). На Фиг. III.6 са показани резултатите, получени от участниците в сравнението. Полученият от нас резултат бе в рамките на 10 % от референтната стойност. Успешното ни участие в това сравнение е още един аргумент за това, че трековият метод, предложен в тази работа, може да се прилага за количествени измервания на ^{222}Rn във води.

III.2 Основни резултати и изводи от изследванията в Глава IV от дисертацията

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

Първият от разработените методи за измерване на ^{222}Rn във вода се реализира

чрез бета/гама-измервания на облъчени във водата поликарбонати. Избрани са оптимални условия на облъчване и за тях са получени калибровъчни коефициенти. Оценената минимална детектуема обемна активност на метода е 12 Bq.l^{-1} , което е под препоръчаната от Европейската Комисия стойност за референтното ниво за ^{222}Rn във водоизточници от 100 Bq.l^{-1} . Предложеният метод позволява бързи измервания (до 24-48 часа) за целите на радиационен контрол на ^{222}Rn във водоизточници. Методът е публикуван в [44].

Вторият разработен метод се реализира чрез ецване на трекове от алфа-частици в облъчени във водата поликарбонати. За целите на оптимизиране на метода е разработен модел, пресмятащ дълбочинното разпределение на плътността на трековете в детектори, облъчени във вода. Резултатите от модела показват, че калибровъчните коефициенти за детектори с дебелина над $500 \mu\text{m}$ не се различават до дълбочини от $150 \mu\text{m}$. Предимство на метода, демонстрирано от модела, е че плътността на трековете е почти постоянна в широк интервал около максимума си. При температури на облъчване от 5 до 38°C е препоръчително да се ецва на дълбочина $55 \div 56 \mu\text{m}$, тъй като отклонения в дълбочината до $2 \mu\text{m}$ ще доведат до разлика в калибровъчния коефициент по-малка от 2.5% . В глава IV са дадени и експериментално получените калибровъчни коефициенти за 5 различни дълбочини на ецване. Диапазонът от обемни активности на радона, за които методът е приложим е от 0.06 Bq.l^{-1} (при температура на облъчване 21°C) до 10^4 Bq.l^{-1} . Това показва, че трековият метод може да се прилага и за измервания на ^{226}Ra във води за целите на радиационната защита. Проведеното пилотно измерване на ^{226}Ra в две водни проби показва съгласуваност между резултатите, получени чрез облъчване на поликарбонати и чрез гама-спектрометрия на водата. Резултатът от международно сравнение по измерване на ^{222}Rn във вода, в което участвахме чрез този метод, е в рамките на 10% от референтната стойност при допустимо отклонение от 25% . Разработеният метод, заедно с теоретичния модел за дълбочинното разпределение на трековете и резултатите от измервания са публикувани в [40].

IV. Приноси и публикации

IV.1 Приноси на дисертацията, за които авторът има водеща роля

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

ността на трековете в поликарбонатни пластинки, облъчени във вода, в интервала от 0 до 70 μm под повърхността. Те позволяват оптимизиране на трековия метод за измерване на ^{222}Rn и ^{226}Ra във води чрез избор на дълбочина на ецване, водеща да по-ниска минимална детектеруема обемна активност.

IV.2 Публикации, в които са представени резултатите от дисертацията

Публикации в списания

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

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

1. D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, K. Mitev. Radon survey based on home stored CDs/DVDs. *Proceedings of Third European IRPA Congress, 2010.*:P03-14. <http://www.irpa2010europe.com/proceedings.htm>

2. И. Димитрова, С. Георгиев, К. Митев, Т. Бошкова, Д. Пресиянов. Корекция за облъчване в малък обем при измерване на ^{222}Rn във води чрез абсорбция в поликарбонати. *Сборник доклади от XX национален научен симпозиум Метрология и метрологично осигуряване 2010:254-259*, 2010.
 3. И. Димитрова, С. Георгиев, К. Митев, Д. Пресиянов. Калибриране на компакт дискове за измервания на Радон-222 във въздух. *Сборник доклади от XIX национален научен симпозиум Метрология и метрологично осигуряване 2009:347-354*, 2009
 4. D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, K. Mitev. Measurement of ^{222}Rn by absorption in polycarbonates - research and practice. *Conference Proceeding, 18th AARST International Radon Symposium, Las Vegas, 14 - 17 September 2008:1-10*, 2008. http://aarst.org/radon_research_papers.shtml
 5. K. Mitev, Y. Madzhunkov, G. Gerganov, I. Dimitrova, S. Georgiev, D. Pressyanov. An algorithm for automatic counting of electrochemically etched tracks in compact disks used for retrospective measurements of radon-222. *2008 Nuclear Science Symposium, Dresden, Germany 19-25 October 2008*. IEEE-NSS Conf. record: 1000508:827-832.
-

Библиография

- [1] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly, United Nations, Vienna, 2009.
- [2] WHO, Handbook on indoor radon, World Health Organization, WHO Press, Geneva, 2009
- [3] EPA assessment of risks from radon in homes., Environmental Protection Agency, Washington,DC, 2003
- [4] S. Darby et al. *Scand. J. Work Environ. Health*,32(Suppl1):1-83, 2006.
- [5] EPA assessment of risks from radon in homes., Committee on Health Risks of Exposure to Radon (BEIR VI), National Academy Press, Washington,DC, 2003
- [6] J.H. Lubin et al. *China Radiat. Res.*, 163(5):571-579, 2005.
- [7] Z. Zhang, B. Smith, D.J. Steck, Q. Guo, and R.W. Field. *Health Phys.*, 93(4):288-297, 2007.
- [8] U. Baverstam and G-A. Swedjemark. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 36(2/4):107-112, 1991.
- [9] J.H. Lubin, Jr. Boice, and J.D. Samet. *Radiat. Res.*, 144:329-341, 1995.
- [10] F. Bochicchio. *Radiat. Meas.*, 40:177-190, 2005.
- [11] R. S. Lively and E.P. Ney. *Health Phys.*, 52(4):411-415, 1987.
- [12] C. Samuelsson. *Nature*, 334:338-340, 1988.
- [13] S. Oberstedt and H. Vanmarcke. *Health Phys.*, 70(2):222-226, 1996.
- [14] R.L. Fleischer. *Health Phys.*, 52:219-221, 1987.
- [15] D. Pressyanov, A. Van Deynse, J. Buysse, A. Poffijn, and G. Meesen. In *Proceedings of IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe.*, pages 716-722, Cedex, France, 1999.
- [16] Commission of the European Communities, Document number C(2001) 4580, OJ L 344, 28.12.2001, 85
- [17] WHO, Guidelines for drinking water quality, World Health Organization, WHO Press, Geneva, 2008.
- [18] Наредба №7 за показатели и норми за определяне на качеството на течащите повърхностни води, Държавен вестник, брой 96, София, 1986.
- [19] National Primary Drinking Water Regulations, Environmental Protection Agency, Washington,DC, 2000.
- [20] H. More and L.M. Hubbard. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 74:85-91, 1997.
- [21] S.A. Durrani and R. Ilic, editors. Radon measurements by etched track detectors: applications in radiation protections, earth sciences and the environment, World Scientific Publishing Co, Pte, Ltd, Singapore, 1997.
- [22] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Van Deynse, A. Poffijn, and G. Meesen. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 457:665-666, 2001.

- [23] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Poffijn, G. Meesen, and A. Van Deynse. *Health Phys.*, 84:642-651, 2003.
 - [24] D. Pressyanov, J. Buysse, A. Poffijn, A. Van Deynse, and G. Meesen. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 516:203-208, 2004.
 - [25] F. Hernandez, S. Gonzalez-Manrique, L. Karlsson, J. Hernandez-Armas, and A. Aparicio. *Radiat. Meas.*, 42:496-504, 2007.
 - [26] K. Amgarou, L. Font, D. Albarracin, C. Domingo, F. Fernandes, and C. Baixeras. *Radiat. Meas.*, 33:203-209, 2001.
 - [27] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly, United Nations, Vienna, 2000.
 - [28] J.L. Picolo, D. Pressyanov, P. Blanchis, M. Barbier, N. Michielsen, D. Grassin, V. Voisin, and K. Turek. *Appl. Radiat. Isot.*, 52:427-434, 2000.
 - [29] I. Dimitrova, D. Pressyanov, S. Georgiev, and P. Yankov. *Radiat. Prot. Dosim.*, 145(2-3):300-304, 2011.
 - [30] D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and K. Mitev. In *Proceedings of Third European IRPA Congress.*, Helsinki, 2010.
 - [31] K. Mitev, Y. Madzhunkov, G. Gerganov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and D. Pressyanov. In *2008 Nuclear Science Symposium. IEEE-NSS Conf. record: 1000508.*, pages 827-832, Dresden, 2008.
 - [32] K. Mitev, Y. Madzhunkov, G. Gerganov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and D. Pressyanov. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 57:300-308, 2010.
 - [33] И. Димитрова, С. Георгиев, К. Митев и Д. Пресиянов. В *Сборник доклади от ІХХ национален научен симпозиум „Метрология и метрологично осигуряване“*, стр.347-354, Созопол, 2009.
 - [34] D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, and K. Mitev. In *Proceedings of 18th AARST International Radon Symposium.*, pages 1-10, Las Vegas, 2008.
 - [35] D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, and I. Dimitrova. *J. Environ. Radioact.*, 10:821-825, 2010.
 - [36] D. S. Pressyanov, K. K. Mitev, and D. H. Stefanov. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 527:657-659, 2004.
 - [37] K. Mitev, D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, T. Boshkova, and V. Zhivkova. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 603:491-494, 2009.
 - [38] I. Dimitrova, K. Mitev, D. Pressyanov, and S. Georgiev. *Trans. BgNS*, pages 33-37, 2008.
 - [39] D. Pressyanov, K. Mitev, S. Georgiev, and I. Dimitrova. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 598:620-627, 2009.
 - [40] I. Dimitrova, K. Mitev, D. Pressyanov, S. Georgiev, and T. Boshkova. *Radiat. Meas.*, 46(1):119-126, 2011.
 - [41] D. Pressyanov. *Health.Phys.*, 6(97):604-612, 2009.
 - [42] M.E. Kitto, A. Bari, D.K. Haines, T.A. Menia, and E.M. Fielman. In *Proceedings of the 2009 International Radon Symposium.*, pages 90-96, St. Louis, MO, 2009.
 - [43] И. Димитрова, С. Георгиев, К. Митев, Т. Бошкова и Д. Пресиянов. В *Сборник доклади от ХХ национален научен симпозиум „Метрология и метрологично осигуряване“*, стр.254-259, Созопол, 2010.
 - [44] D. Pressyanov, I. Dimitrova, S. Georgiev, E. Hristova, and K. Mitev. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect.A*, 574:202-204, 2007.
-