



УНИВЕРЗИТЕТ У КРАГУЈЕВЦУ
ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ

Јелена Стајић

**ПРОУЧАВАЊЕ ЕМАНАЦИЈЕ, ЕКСХАЛАЦИЈЕ И
МЕРНИХ ТЕХНИКА РАДОНА**

Докторска дисертација

Крагујевац, 2015

Идентификациона страница докторске дисертације

<i>I Аутор</i>	
Име и презиме:	Јелена Стајић
Датум и место рођења:	13.03.1984. године, Краљево
Садашње запослење:	Истраживач-сарадник у Институту за физику ПМФ-а у Крагујевцу
<i>II Докторска дисертација</i>	
Наслов:	Проучавање еманације, ексхалације и мерних техника радона
Број страница:	162
Број слика:	63
Број библиографских података:	149
Установа и место где је рад израђен:	ПМФ, Крагујевац
Научна област (УДК):	539.163
Ментор:	Др Драгослав Никезић, ПМФ Крагујевац
<i>III Оцена и одбрана</i>	
Датум пријаве теме:	12.09.2014. године
Број одлуке и датум прихватања докторске дисертације:	
Комисија за оцену подобности теме и кандидата: ❖ Др Драгослав Никезић, редовни професор Природно-математичког факултета у Крагујевцу ужа научна област: Радијациона физика, ментор ❖ Др Владимир Удовичић, виши научни сарадник, Институт за физику, Београд ужа научна област: Радијациона физика ❖ Др Ненад Стевановић, доцент Природно-математичког факултета у Крагујевцу ужа научна област: Радијациона физика	
Комисија за оцену и одбрану докторске дисертације: ❖ Др Драгослав Никезић, редовни професор Природно-математичког факултета у Крагујевцу ужа научна област: Радијациона физика, ментор ❖ Др Владимир Удовичић, виши научни сарадник, Институт за физику, Београд ужа научна област: Радијациона физика ❖ Др Ненад Стевановић, доцент Природно-математичког факултета у Крагујевцу ужа научна област: Радијациона физика	
Датум одбране дисертације:	

Захвалница

Ова дисертација је рађена на Природно-математичком факултету, при Катедри за физику у Крагујевцу, под менторством проф. др Драгослава Никезића.

Изражавам посебну захвалност проф. др Драгославу Никезићу на помоћи и подрици у току израде ове дисертације. Захвалност дугујем и осталим члановима комисије на корисним сугестијама и саветима.

Захваљујем се колегама и колегиницама са Катедре за физику Природно-математичког факултета, који су ми пружили помоћ приликом израде дисертације.

Највећу захвалност дугујем својим родитељима, брату, супругу и синовима, на несебичној помоћи и неизмерном стрпљењу, подрици и мотивацији.

Списак радова

(*) звездица означава радове који су проистекли из ове дисертације

- 1*. J. Stajic, D. Nikezic (2011) *Hit probability of a disk shaped detector with particles with a finite range emitted by a point-like source*. Applied Radiation and Isotopes 69, 875–879.
- 2*. J. Stajic, D. Nikezic (2012) *Detection efficiency of a disk shaped detector with a critical detection angle for particles with a finite range emitted by a point-like source*. Applied Radiation and Isotopes 70, 528–532.
3. Ljiljana R. Gulan, Francesco Boichichio, Carmela Carpentieri, Gordana A. Milic, Jelena M. Stajic, Dragana Z. Krstic, Zdenka A. Stojanovska, Dragoslav R. Nikezic, Zora S. Zunic (2013) *High Annual Radon Concentration in Dwellings and Natural Radioactivity Content in Nearby Soil in Some Rural Areas of Kosovo and Metohija*. Nuclear technology & radiation protection 28, 60–67.
4. Ljiljana Gulan, Biljana Milenkovic, Jelena M. Stajic, Biljana Vuckovic, Dragana Krstic, Tijana Zeremski, Jordana Ninkov (2013) *Correlation between radioactivity levels and heavy metal content in the soils of the North Kosovska Mitrovica environment*. Environmental Science: Processes & Impacts (Formerly the Journal of Environmental Monitoring) 15, 1735–1742.
- 5*. D. Nikezic, K.N. Yu, J.M. Stajic (2014) *Computer program for the sensitivity calculation of a CR-39 detector in a diffusion chamber for radon measurements*. Review of Scientific Instruments 85, 022102.
- 6*. J.M. Stajic, D. Nikezic (2014) *Theoretical calculation of radon emanation fraction*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 336, 19–25.
- 7*. J.M. Stajic, D. Nikezic (2015) *Measurement of radon exhalation rates from some building materials used in Serbian construction*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 303, 1943–1947.
- 8*. J.M. Stajic, D. Nikezic (2015) *Analysis of radon and thoron progeny measurements based on air filtration*. Radiation Protection Dosimetry 163, 333–340.

- 9*. J.M. Stajic, D. Nikezic (2015) *The accuracy of radon and thoron progeny concentrations measured through air filtration*. Journal of Environmental Radioactivity 140, 50–58.
- 10*. J.M. Stajic, B. Milenkovic, D. Nikezic (2015) *Radon concentrations in schools and kindergartens in Kragujevac city, Central Serbia*. CLEAN - Soil, Air, Water 43, 1361–1365.
11. B. Milenkovic, J.M. Stajic, Lj. Gulan, D. Nikezic (2015) *Radioactivity levels and heavy metals in the urban soil of Central Serbia*. Environmental Science and Pollution Research 22, 16732–16741.

Списак слика у дисертацији

Слика 1.1 Шема радиоактивног распада урана ^{238}U , са приказаним временима полураспада и енергијама емитованих алфа-честица. Грана алфа-распада бизмута ^{214}Bi је изостављена због мале вероватноће (0.04 %)

Слика 1.2 Шема радиоактивног распада торијума ^{232}Th , са приказаним временима полураспада и енергијама алфа-честица

Слика 1.3 Извори радона у затвореним просторијама [UNSCEAR, 2006]

Слика 1.4 Узмак радона у зрнима чврстог материјала. Пуни кругови представљају места настанка радона, а празни кругови симболишу тачке заустављања: 1 – у унутрашњости зрна; 2 – у неком од суседних зрна; 3 – у пори између зрна. Испрекидана линија ограничава површински слој зрна дебљине једнаке домету радона

Слика 2.1 Уређај RAD7 (Durridge Company Inc.) за активно мерење концентрације радона

Слика 2.2 Дискриминативни радон/торон UFO-дозиметри

Слика 3.1 Геометрија развијања трага за случај нормалног упада честице на површину детектора [Nikezic и Yu, 2004]

Слика 3.2 Упад честице на површину детектора под углом: а) мањим од критичног; б) једнаким критичном; в) већим од критичног угла

Слика 3.3 Две фазе електрохемијског нагризања

Слика 3.4 Трагови алфа-честица радона и његових потомака на Макрофол детектору, након електрохемијског нагризања. Фотографија је добијена у Лабораторији за радијациону физику ПМФ-а Универзитета у Крагујевцу

Слика 4.1 Понашање радонових потомака у близини површине објекта [Nikezic и Yu, 1999]. Индекси имају следећа знаћења: а - атоми у ваздуху; d – атоми депоновани на површини; i – атоми уграђени у објекат. Стрелице илуструју следеће процесе: → радиоактивни распад; ↓ депозиција на површини; ↙ уграђивање у површину; ↗ - одвајање од површине; ^ уклањање вентилацијом. Испрекидане стрелице означавају процесе са малом вероватноћом

Слика 6.1 Сфера G представља зрно материјала, полупречника R. Радон настаје у површинском слоју зрна дебљине једнаке домету радона, D

Слика 6.2 Зависност вероватноће изласка радона из зрна SiO_2 од полупречника зрна. Полазне тачке узмакнутих атома радона су узорковане до дубине D

Слика 6.3. Проста кубна структура (SCS)

Слика 6.4 Модел заснован на површински центрираној кубној структури (FCCS)

Слика 6.5 FCCS модел, пројекција "позитивних" слојева зрна на раван $z = 0$

Слика 6.6 Аналитичко разматрање еманационе фракције: честица створена у тачки T напушта централно зрно у тачки B и има домет D_V у околној средини

Слика 6.7 Вероватноћа да радон, створен у тачки T , при узмаку прође кроз површину dS_B зависи од просторног угла под којим се из тачке T види површина dS_B

Слика 6.8 Расподела излазног угла: ● Монте Карло резултати; — фитовање функцијом $y = a \sin(x) \cos(x)$

Слика 6.9 Резултати добијени Монте Карло методом за модел прости кубне структуре (SCS) и модел површински центриране структуре (FCCS). Разматрана су зрна окружена ваздухом и водом. Стварање радона се симулира само у површинском слоју зрна дебљине D

Слика 6.10 Еманациона фракција као функција полупречника зрна. Атоми ^{226}Ra су хомогено распоређени по целој запремини зрна

Слика 6.11 Еманационе фракције добијене за различите минерале коришћењем Монте Карло методе и SCS модела. Разматрана је хомогена расподела атома ^{226}Ra по запремини зрна

Слика 6.12 Поређење резултата добијених Монте Карло методом и аналитичким приступом за зрна SiO_2 и $R > 0.1 \text{ mm}$. ^{226}Ra је распоређен само у површинском слоју зрна, дебљине D

Слика 7.1 Шема експерименталне поставке

Слика 7.2 Временска промена концентрације радона у експерименталној комори без узорка. Непрекидна линија представља фитовање експерименталних података

Слика 7.3 Пораст концентрације радона у комори са временом излагања. Као узорак је коришћен бехатон

Слика 7.4 Пораст концентрације радона у комори за узорке сувог и овлаженог песка

Слика 7.5 Резултати добијени за зрно SiO_2 окружено великим бројем зрна (●) и зрно на површини узорка (○)

Слика 7.6 Површинска јачина ексхалације у функцији специфичне активности ^{226}Ra у узорцима

Слика 8.1 Кружни детектор полупречника R у xOy равни; извор се налази у произвољној тачки A , са координатама (r_0, θ_0, ϕ_0) у сферном и (X_0, ϕ_0, Z_A) у цилиндричном координатном систему

Слика 8.2 Центар координатног система је измештен у тачку A' , а осе су ротиране тако да центар детектора лежи на x -оси (у тачки O')

Слика 8.3 Пресек кружница K_1 и K_2 (Случај 1). Шрафирана површина представља површину интеграције

Слика 8.4 Алгоритам разликовања случајева на основу задатих услова

Слика 8.5 Две области (шрафирана и тачкаста) се интеграле одвојено (Случај 2.)

Слика 8.6 Цела површина детектора изложена је честицама емитованим из тачке A , а тачка A' је изван кружнице K_2 (Случај 3.)

Слика 8.7 Цела површина детектора је изложена честицама емитованим из тачке A , а тачка A' се налази унутар кружнице K_2 (Случај 4)

Слика 8.8 Тачка A' се налази на површини детектора (унутар кружнице K_2), али је само део детектора изложен честицама (Случај 5)

Слика 8.9 Тачка A' је на површини детектора. Цела кружница K_1 лежи унутар кружнице K_2 (Случај 6)

Слика 8.10 Честице падају на површину детектора под различитим угловима (β). Кружница K_L одређена је углом β_L који је дефинисан у тексту

Слика 8.11 Тачкасти извор емитује честице у свим правцима у простору. Честице које прелазе растојање d и падају на xOy раван под углом β_d имају упадну енергију E_d^{inc}

Слика 8.12 Упадни и критични угао у функцији упадне енергије. Тачка пресека ове две функције одређује енергију E_L^{inc}

Слика 9.1 Поређење експерименталних вредности калибрационих коефицијената са резултатима које програм даје за пет различитих V функција. Пуни кругови (●) представљају резултате програма; испрекидане линије (— — —) представљају експерименталне вредности које су дали аутори: а) Garawi; б) Ismail и Jaafar; в) Antovic и др.; г) Mahlobo и Farid

Слика 10.1 Пораст активности радонових потомака на филтеру током филтрирања.

Претпостављене су вредности: $\eta = 0.8$; $v = 0.2$ l/s

Слика 10.2 Концентрације радонових потомака добијене варирањем одброја R_3 у интервалу од 285 до 320, док су вредности преостала два одброја: $R_1 = 61$ и $R_2 = 255$

Слика 10.3 Промена добијених вредности концентрација потомака при варирању одброја измерених у другом интервалу, R_2

Слика 10.4 Концентрације потомака добијене варирањем одброја R_1 у интервалу од 53 до 69

Слика 10.5 Пораст активности торонових потомака на филтеру за време филтрирања.

Претпостављене концентрације ^{212}Pb и ^{212}Bi у ваздуху су $A_4 = 20 \text{ Bq m}^{-3}$ и $A_5 = 10 \text{ Bq m}^{-3}$

Слика 10.6 Добијене вредности концентрација торонових потомака у ваздуху у функцији одброја детектованих у четвртном интервалу, R_4

Слика 10.7 Концентрације ^{212}Pb и ^{212}Bi добијене варирањем одброја у последњем интервалу мерења, R_5

Слика 10.8 Релативне стандардне девијације потомака у функцији концентрације радона у ваздуху. Коцентрације торона су 20 Bq m^{-3} (а); 100 Bq m^{-3} (б); 200 Bq m^{-3} (в); 400 Bq m^{-3} (г)

Слика 10.9 Концентрације потомака радона (а) и торона (б) са приказаним грешкама које одговарају вредностима стандардних девијација. Концентрација торона је 200 Bq m^{-3}

Слика 10.10 Релативне стандардне девијације потомака радона и торона у функцији концентрације торона. Концентрација радона је 200 Bq m^{-3}

Слика 10.11 Концентрације потомака радона (а) и торона (б) са грешкама које одговарају стандардним девијацијама. Концентрација радона је 200 Bq m^{-3}

Слика 10.12 Релативне стандардне девијације концентрација потомака радона и торона у функцији времена филтрирања

Слика 10.13 Промене стандардних девијација концентрација потомака радона (а) и торона (б) при промени времена филтрирања. Концентрације радона и торона су $A_{Rn} = A_{Tn} = 200 \text{ Bq m}^{-3}$

Слика 10.14 Пораст активности радонових и торонових потомака на филтеру.

Концентрације радона и торона су $A_{Rn} = A_{Tn} = 200 \text{ Bq m}^{-3}$

Слика 10.15 Укупна сума свих пет релативних стандардних девијација у функцији времена филтрирања, за различите односе концентрација радона и торона у ваздуху

Слика 10.16 Детерминанта матрице Z у функцији времена филтрирања

Слика 10.17 Вредности детерминанте добијене за различите комбинације интервала мерења

Слика 11.1 Градско подручје са обележеним локацијама школа и обданишта

Слика 11.2 Пораст концентрације радона у комори при калибрацији UFO-детектора

Слика 11.3 Фреквентна расподела концентрације радона у школама и обдаништима

Слика 11.4 Средње концентрације радона у зависности од периода изградње објекта

Списак табела у дисертацији

Табела 1.1 Типичне концентрације ^{222}Rn [Fleischer, 1997]

Табела 4.1 Вредности параметара Јакобијевог модела (h^{-1})

Табела 4.2 Потенцијалне енергије алфа-честица по једном атому (E_i) и по јединичној активности (E_i/λ_i) потомака у ланцу распада радона и торона

Табела 7.1 Површинске (E_A) и масене (E_m) јачине ексхалације радона из грађевинских материјала, добијене фитовањем експерименталних података

Табела 7.2 Површинске и масене јачине ексхалације узорка земљишта, постављеног у посуде различитих димензија

Табела 7.3 Поређење добијених вредности јачина ексхалације са резултатима других аутора

Табела 7.4 Резултати гамаспектрометријске анализе узорака

Табела 8.1 Поређење резултата добијених аналитички и Монте Карло методом

Табела 8.2 Ефикасност детекције добијена аналитички и применом Монте Карло симулација, узимајући у обзир постојање критичног угла. Резултати се односе на CR-39 детектор и алфа-честице са почетном енергијом $E_0 = 6 \text{ MeV}$

Табела 9.1 Неке од вредности експериментално добијених калибрационих коефицијената, пронађених у литератури

Табела 10.1 Варирање мерних интервала за које су рачунате детерминанте

Табела 10.2 Интервали мерења који су дали највеће вредности детерминанти (границе интервала су дате у min, мерено од тренутка престанка филтрирања)

Табела 10.3 Минималне и максималне релативне стандардне девијације са одговарајућим периодима филтрирања

Табела 10.4 Минималне вредности суме стандардних девијација и одговарајући периоди филтрирања, за различите концентрације торона у ваздуху. Претпостављена је концентрација радона од 200 Bq m^{-3}

Табела 10.5 Варирање интервала мерења алфа-активности са филтера

Табела 10.6 Комбинације мерних интервала које дају најмање суме релативних стандардних девијација

Табела 10.7 Утицај вредности детерминанте на стабилност резултата

Табела 11.1 Резултати мерења концентрација радона у школама и обдаништима

Табела 11.2 Дескриптивна статистика измерених концентрација радона (вредности су дате у Bq m^{-3})

САДРЖАЈ

УВОД.....	1
Распоред материјала по главама.....	2
I) ОПШТА РАЗМАТРАЊА	7
1. РАДОН – ОСНОВНЕ КАРАКТЕРИСТИКЕ	7
1.1 Изотопи радона	7
1.2 Извори и транспорт радона	10
1.2.1 Извори радона у затвореним просторијама.....	12
1.2.2 Дневне и сезонске варијације концентрације радона.....	13
1.3 Еманација радона	14
1.4 Ексхалација радона	16
2. МЕРЕЊЕ КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНА.....	17
2.1 Активне методе мерења.....	17
2.2 Пасивне методе	18
3. ЧВРСТИ НУКЛЕАРНИ ТРАГ ДЕТЕКТОРИ.....	21
3.1 Формирање латентних трагова у чврстим траг детекторима	21
3.2 Геометрија развоја трага	23
3.3 Критични угао и зависност детекције од енергије честица	24
3.4 Хемијско нагризање.....	26
3.5 Електрохемијско нагризање.....	26
4. МЕРЕЊЕ КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНОВИХ И ТОРОНОВИХ ПОТОМАКА У ВАЗДУХУ	29
4.1 Понашање радонових и торонних потомака у затвореним просторијама.....	29
4.2 Основне величине којима се описују концентрације радона, торона и њихових потомака.....	31
4.3 Мерење концентрација потомака методом филтрирања ваздуха	34
5. МОНТЕ КАРЛО МЕТОД	37
5.1 Случајни догађаји и њихове вероватноће.....	37
5.2 Случајне променљиве.....	38
5.3 Генерисање случајног правца и случајне тачке у запремини сфере	41
5.3.1 Генерисање случајне тачке у површинском слоју запремине сфере, дебљине D	42
II) ИСТРАЖИВАЧКИ ДЕО	45
6. ТЕОРИЈСКО ИЗРАЧУНАВАЊЕ ЕМАНАЦИОНЕ ФРАКЦИЈЕ РАДОНА	45

6.1 Вероватноћа изласка из зрна.....	45
6.1.1 Аналитички приступ.....	45
6.1.2 Монте Карло приступ.....	47
6.2 Скуп зрна разматран Монте Карло методом.....	48
6.2.1 Проста кубна структура (SCS - Simple Cubic Structure).....	48
6.2.2 Површински центрирана кубна структура (FCCS –Face Centered Cubic Structure) .	51
6.3 Аналитичко разматрање скупа зрна.....	53
6.4 Резултати и дискусија.....	58
6.5 Поређење резултата	61
7. ЕКСПЕРИМЕНТАЛНО ОДРЕЂИВАЊЕ ЈАЧИНЕ ЕКСХАЛАЦИЈЕ РАДОНА ИЗ ГРАЂЕВИНСКИХ МАТЕРИЈАЛА.....	63
7.1 Теоријско разматрање.....	63
7.2 Мерење јачине ексхалације.....	64
7.2.1 Комора без узорака	64
7.2.2 Мерење јачине ексхалације радона из грађевинских материјала	66
7.3 Гама спектрометрија.....	66
7.4 Резултати мерења.....	67
7.4.1 Јачина ексхалације	67
7.4.2 Зависност јачине ексхалације радона од слободне површине грануларних узорака	69
7.4.3 Поређење са резултатима других аутора.....	70
7.4.4 Резултати гамаспектрометрије узорака грађевинских материјала.....	71
7.4.5 Поређење теоријских и експерименталних резултата.....	72
8. ЕФИКАСНОСТ ДЕТЕКТОРА ОБЛИКА ДИСКА ЗА ЧЕСТИЦЕ КОНАЧНОГ ДОМЕТА ЕМИТОВАНЕ ИЗ ТАЧКАСТОГ ИЗВОРА	75
8.1 Геометријска ефикасност детектора	75
8.1.1 Анализа појединачних случајева.....	80
8.1.2 Поређење са Монте Карло прорачунима.....	86
8.2 Разматрање критичног угла детекције.....	87
8.2.1 Анализа појединачних случајева.....	92
8.2.2 Поређење са Монте Карло резултатима	94
9. ПРОГРАМ ЗА ИЗРАЧУНАВАЊЕ КАЛИБРАЦИОНОГ КОЕФИЦИЈЕНТА CR-39 ДЕТЕКТОРА ЗА МЕРЕЊЕ КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНА У ДИФУЗИОНОЈ КОМОРИ.....	97
9.1 Опис компјутерског програма и улазних параметара	97
9.1.1 Програм QUEST.F90.....	97
9.1.2 Дискусија везана за V функцију	98
9.1.3 Рачунање калибрационог коефицијента	100
9.1.4 Потпрограма CHAMBER_VOLUME.F90.....	100
9.1.5 Потпрограма CHAMBER_WALL.F90	101
9.1.6 Потпрограма CHAMBER_PLATE.F90	101
9.2 Коначни резултати	102
9.2.1 Поређење са експерименталним подацима	102

10. АНАЛИЗА МЕРЕЊА КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНОВИХ И ТОРОНОВИХ ПОТОМАКА У ВАЗДУХУ МЕТОДОМ ФИЛТРИРАЊА.....	105
10.1 Одсуство торона и његових потомака.....	105
10.1.1 Директно одређивање РАЕС–а.....	105
10.1.2 Распадање потомака на филтеру након престанка филтрирања	109
10.2 Присуство торона у ваздуху.....	114
10.2.1 Осетљивост израчунатих активности ^{212}Pb и ^{212}Bi на промене броја детектованих алфа-импулса.....	117
10.3 Анализа стандардне девијације и детерминанте система	118
10.3.1 Варирање концентрација потомака радона и торона у ваздуху	122
10.3.2 Варирање времена филтрирања.....	125
10.3.3 Варирање мерних интервала.....	130
11. КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНА У КРАГУЈЕВАЧКИМ ШКОЛАМА И ОБДАНИШТИМА	135
11.1 Техника мерења.....	136
11.2 Калибрација UFO-детектора за радон.....	136
11.3 Резултати мерења	138
ЗАКЉУЧАК.....	143
РЕФЕРЕНЦЕ	147

УВОД

Људски организам је током читавог живота изложен зрачењу које потиче од природних и вештачких (антропогених) радионуклида присутних у животној средини. Контаминација животне средине антропогеним радионуклидима је настала као резултат људских активности и представља последицу нуклеарних проба и акцидената који су се догодили током претходних деценија. Насупрот томе, природно излагање је условљено структуром и еволуцијом свемира и присутно је на Земљи још од њеног настанка. Састоји се од космичког зрачења и зрачења примордијалних радионуклида.

Примарно космичко зрачење је галактичког и соларног порекла и оно слабо доспева до Земљине површине, али у интеракцији са горњим слојевима атмосфере доводи до стварања космогених радионуклида који у извесној мери доприносе озрачивању живог света. Најзаступљенији представници ове групе радионуклида су: трицијум ^3H , угљеник ^{14}C , натријум ^{22}Na и берилијум ^7Be , а у нешто мањем проценту се јављају и флуор ^{18}F , берилијум ^{10}Be , натријум ^{24}Na , алуминијум ^{26}Al , магнезијум ^{38}Mg , криптон ^{80}Kr и изотопи силицијума ^{31}Si , ^{32}Si , фосфора ^{32}P , ^{33}P , сумпора ^{35}S , ^{38}S , аргона ^{37}Ar , ^{39}Ar и хлора $^{34\text{m}}\text{Cl}$, ^{36}Cl , ^{38}Cl , ^{39}Cl . Космичко зрачење зависи од географског положаја и његов интензитет расте са приближавањем Земљиним половима.

Примордијални радионуклиди су настали у процесима нуклеосинтезе још пре формирања Земље и карактерише их дуг период полураспада. Осим чланова природних радиоактивних низова урана ^{235}U , ^{238}U и торијума ^{232}Th , у ову групу радионуклида спадају и: калијум ^{40}K , рубидијум ^{87}Rb , ванадијум ^{50}V , кадмијум ^{113}Cd , индијум ^{115}In , телур ^{123}Te , лантан ^{138}La , церијум ^{142}Ce , неодимијум ^{144}Nd , самаријум ^{147}Sm , гадолинијум ^{152}Gd , хафнијум ^{174}Hf , лутецијум ^{176}Lu , ренијум ^{187}Re , платина ^{190}Pt , ^{192}Pt и бизмут ^{209}Bi [UNSCEAR, 2000]. Због своје заступљености у природи, највећи значај имају ^{40}K , ^{238}U и ^{232}Th који, заједно са својим радиоактивним потомцима, представљају доминантни извор спољашњег озрачивања људске популације (путем гама зрачења), као и извор унутрашњег алфа, бета и гама озрачивања заснованог на инхалацији и ингестији радионуклида кроз ланац исхране.

Изотопи радона, ^{219}Rn , ^{222}Rn и ^{220}Rn , настају у ланцима радиоактивних распада примордијалних радионуклида - урана ^{235}U , ^{238}U и торијума ^{232}Th , респективно. Као гасовити продукти, имају могућност напуштања места настанка и ексхалације у атмосферу. Њихова

концентрација у атмосфери је изузетно мала у поређењу са концентрацијом у земљишту, стенама и другим материјалима који у значајној мери садрже поменуте радионуклиде [Fleischer и др, 1997]. Међутим, због могућности акумулирања у затвореним просторијама, ови радиоактивни гасови дају доминантни допринос укупној дози озрачивања становништва [UNSCEAR, 2008]. Штетни ефекти се првенствено заснивају на инхалацији изотопа радона и њихових краткоживећих потомака, који емитују алфа, бета и гама зрачење. Краткодометно алфа-зрачење има најважнију улогу са аспекта стварања радиолошких оштећења осетљивих ткива у људском организму. Светска здравствена организација идентификовала је радон као други водећи узрочник канцера плућа, после дуванског дима [WHO, 2005].

Многобројна истраживања која су потврдила штетни утицај радона и његових потомака на људско здравље привукла су пажњу шире друштвене заједнице и подстакла интересовање научника широм света за спровођење систематских мерења концентрација радона у ваздуху и израду радонских мапа. У складу са тим, вршена су и интензивна истраживања заснована на развијању нових и унапређивању постојећих мерних метода.

У циљу процене и контроле излагања становништва, истраживања су текла и у правцу проучавања различитих извора радона, као и механизма његовог доспевања у атмосферу. Тло и грађевински материјали, коришћени при конструкцији објеката, спадају у важне изворе радона у затвореним просторијама. Еманација и ексхалација радона из поменутих извора зависе од садржаја одговарајућих изотопа радијума, али и од састава, порозности и структуре самих материјала.

Ова дисертација обухвата више тематских целина заснованих на проучавању процеса доспевања радона у атмосферу и различитим техникама мерења његове концентрације и концентрације његових краткоживећих потомака у ваздуху. Представљени резултати су добијени комбинацијом експерименталних метода, Монте Карло симулација и аналитичких приступа.

Распоред материјала по главама

Дисертација се састоји из два дела:

I) ОПШТА РАЗМАТРАЊА и

II) ИСТРАЖИВАЧКИ ДЕО

Део ОПШТА РАЗМАТРАЊА садржи пет глава у којима је укратко приказан преглед стања у овој области, дефинисани основни појмови и направљен увод у истраживачки део. Овај део представља монографски приказ познатих чињеница и резултата ранијих проучавања и не садржи оригинални научни допринос аутора.

У првој глави су приказане шеме радиоактивних низова распада урана ^{238}U и торијума ^{232}Th . Представљене су опште особине изотопа радона, његови најзначајнији извори и механизми транспорта у природи. Описани су процеси еманације и ексхалације којима радон, настао у минералним зрнима, напушта места свог настанка и доспева у атмосферу.

Друга глава описује активне и пасивне методе мерења концентрације радона у ваздуху. У њој су представљене основне карактеристике уређаја RAD7 који се примењује у експерименталним мерењима описаним у другом делу рада.

Трећа глава даје детаљнији приказ пасивне методе мерења засноване на коришћењу чврстих траг детектора. Описане су основне особине детектора, механизми формирања латентних трагова при проласку тешких наелектрисаних честица кроз диелектричне материјале и технике развијања трагова коришћењем хемијског и електрохемијског нагризања.

Четврта глава је посвећена краткоживећим потомцима радона ^{222}Rn и торона ^{220}Rn и њиховом понашању у затвореним просторијама. Дефинисане су основне величина које се користе за описивање њихових концентрација у ваздуху. Такође је представљена и једна од често примењиваних метода мерења концентрација потомака у ваздуху, заснована на процесу филтрирања ваздуха кроз одговарајуће филтере са којих се затим врше мерења алфа, бета или гама зрачења.

Пета глава даје кратки опис Монте Карло методе, уз представљање начина генерисања случајних праваца и случајне тачке са униформном расподелом у запремини сфере.

ИСТРАЖИВАЧКИ ДЕО дисертације представља оригинални научни допринос аутора, а резултати су приказани у главама 6 – 11.

У шестој глави изложен је алгоритам теоријске процене еманационе фракције радона ^{222}Rn у материјалима зрнасте структуре. Разматрана је еманација заснована искључиво на узмаку атома ^{222}Rn , након распада ^{226}Ra и емисије алфа-честице са енергијом 4.78 MeV. Представљени су резултати за зрна SiO_2 , распоређена на основу два различита модела. Утицај влаге на еманацију је потврђен поређењем вредности добијених за случај воде и ваздуха у порама између зрна. Прорачуни су вршени коришћењем Монте Карло методе и аналитичког приступа. Добијени резултати су доста мањи у поређењу са доступним експерименталним подацима, нарочито у случају претпостављене хомогене расподеле ^{226}Ra у запремини зрна. То се може објаснити доприносом додатних механизма еманације, постојањем мреже пора у унутрашњости самих зрна и нехомогеном расподелом ^{226}Ra у структури материјала у природи. Из овог дела дисертације проистекла је публикација:

J.M. Stajic, D. Nikezic, 2014. *Theoretical calculation of radon emanation fraction. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 336, 19-25.

У седмој глави приказани су резултати експерименталних мерења јачине ексхалације радона ^{222}Rn из узорака грађевинских материјала, добијени коришћењем коморе повезане са уређајем RAD7. Фитовањем криве пораста концентрације радона у комори добијене су вредности површинских јачина ексхалације чврстих (компактних) узорака и масених јачина ексхалације грануларних узорака. Извршена је и гамаспектрометријска анализа грађевинских материјала и испитивана корелација између јачине ексхалације радона ^{222}Rn и специфичне активности ^{226}Ra у узорцима. Резултати овог дела дисертације публиковани су у раду:

J.M. Stajic, D. Nikezic, 2015. *Measurement of radon exhalation rates from some building materials used in Serbian construction. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 303, 1943-1947.

У осмој глави је приказан аналитички метод одређивања геометријске ефикасности детектора облика диска за честице коначног домета, емитоване из тачкастог извора. Дискутовани су различити случајеви, у зависности од домета честица, димензија детектора и његовог положаја у односу на извор. Посебно је разматран случај постојања критичног угла детекције. Ова проблематика се често јавља при коришћењу чврстих траг детектора, који налазе широку примену у мерењу концентрације радона у ваздуху. Приказано је поређење резултата аналитичке методе са вредностима добијеним коришћењем Монте Карло симулација. Из овог дела дисертације проистекле су публикације:

J. Stajic, D. Nikezic, 2011. *Hit probability of a disk shaped detector with particles with a finite range emitted by a point-like source. Applied Radiation and Isotopes* 69, 875-879

J. Stajic, D. Nikezic, 2012. *Detection efficiency of a disk shaped detector with a critical detection angle for particles with a finite range emitted by a point-like source. Applied Radiation and Isotopes* 70, 528–532.

У деветој глави је представљен софтвер за одређивање калибрационог коефицијента CR-39 детектора за мерења радона у дифузионој комори конусног или цилиндричног облика. Програм се може користити за оптимизацију димензија дифузионе коморе, облика и величине детектора, као и комплетног процеса мерења. Приказано је поређење резултата које програм даје за различите облике V функције са вредностима калибрационих коефицијената доступним у литератури. Ови резултати су публиковани у раду:

D. Nikezic, K.N. Yu, **J.M. Stajic**, 2014. *Computer program for the sensitivity calculation of a CR-39 detector in a diffusion chamber for radon measurements. Review of Scientific Instruments* 85, 022102.

Десета глава приказује анализу методе мерења концентрација краткоживећих потомака радона (^{222}Rn) и торона (^{220}Rn), засноване на филтрирању ваздуха и мерењу алфа-активности са филтера. Разматран је узрок појаве нетачних и физички неприхватљивих вредности које се често добијају као резултат експерименталне примене ове методе. Анализиране су вредности релативних стандардних девијација појединачних потомака у зависности од њихових концентрација, времена филтрирања и избора мерних интервала. Такође је испитиван и утицај детерминанте система једначина на стабилност резултата. Услед велике осетљивости система на варијације измерених одброја које су статистички неизбежне, метод се показује као прилично непоуздан. Из овог дела дисертације проистекле су публикације:

J.M. Stajic, D. Nikezic, 2015. *Analysis of radon and thoron progeny measurements based on air filtration. Radiation Protection Dosimetry* 163, 333-340.

J.M. Stajic, D. Nikezic, 2015. *The accuracy of radon and thoron progeny concentrations measured through air filtration. Journal of Environmental Radioactivity* 140, 50-58.

У једанаестој глави су приказани резултати експерименталног мерења концентрација радона у школама и обдаништима на територији града Крагујевца. Мерења су вршена помоћу UFO-комора и поликарбонатних детектора који су, након тромесечног излагања, били подвргнути процесу електрохемијског нагризања. Добијене вредности концентрација су релативно ниске и не превазилазе препоручену границу од 200 Bq m^{-3} [ICRP, 1993]. Резултати овог дела дисертације су публиковани у раду:

J.M. Stajic, B. Milenkovic, D. Nikezic, 2015. *Radon concentrations in schools and kindergartens in Kragujevac city, Central Serbia. CLEAN – Soil, Air, Water* 43, 1361-1365.

I) ОПШТА РАЗМАТРАЊА

1. РАДОН – ОСНОВНЕ КАРАКТЕРИСТИКЕ

1.1 Изотопи радона

Радон је природни, радиоактивни гас без боје, мириса и укуса. Настаје као један од потомака у ланцу радиоактивних распада одговарајућих примордијалних радионуклида, који су у мањој или већој мери присутни у свим природним материјалима. Са редним бројем 86, спада у групу племенитих гасова и хемијски је јако инертан. Захваљујући својој хемијској инертности, а у зависности од времена полураспада, има могућност миграције од места настанка, што узрокује његово присуство у атмосфери. У природи се јавља у виду три изотопа:

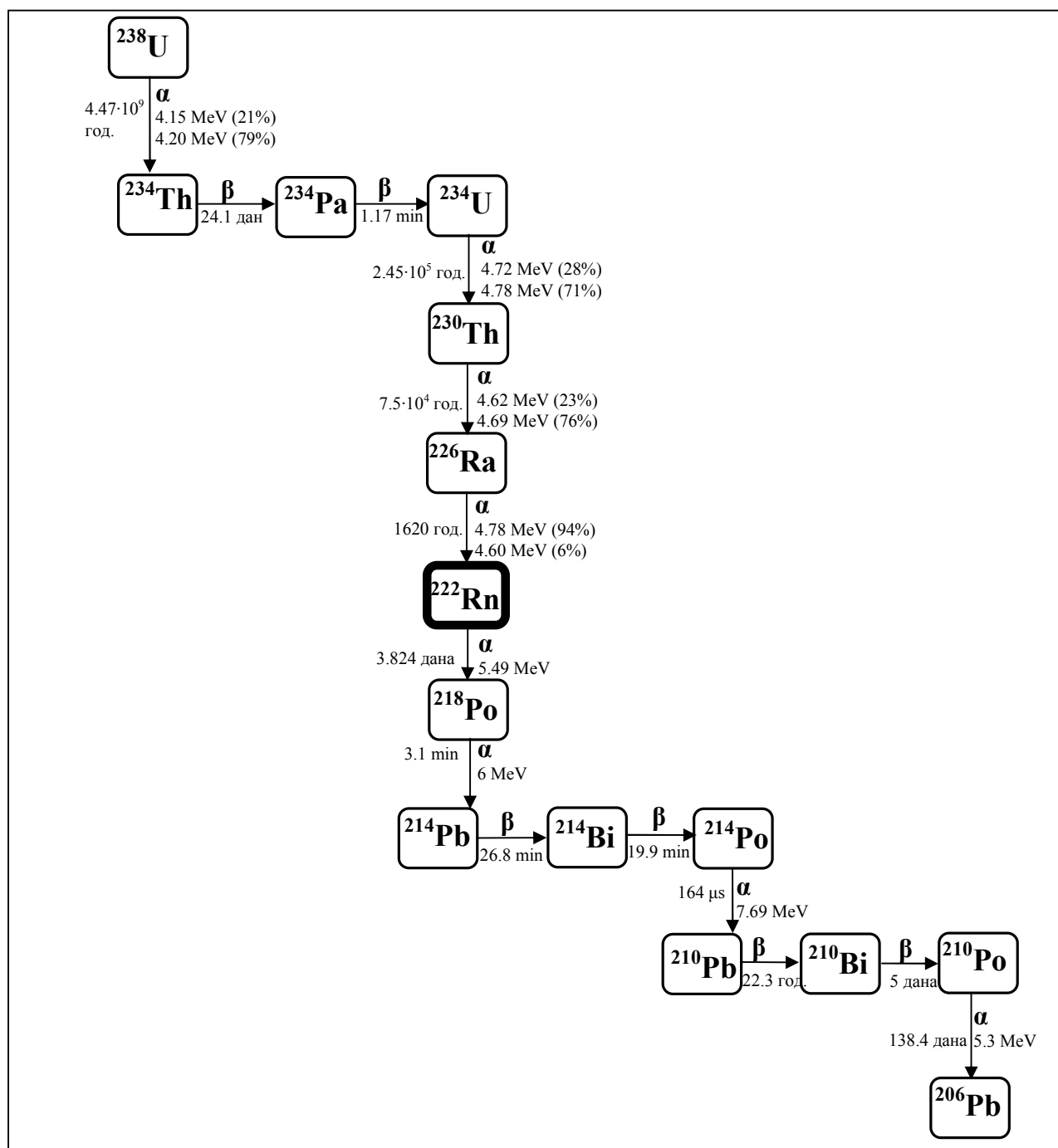
- ^{222}Rn – најзначајнији изотоп који се најчешће и подразумева под термином "**радон**", има период полураспада од 3.824 дана, а настаје у ланцу распада урана ^{238}U ;
- ^{220}Rn – познат под називом **торон**, са периодом полураспада од 55.6 s, настаје као један од потомака у низу распада торијума ^{232}Th ;
- ^{219}Rn – **актинон**, има период полураспада од 3.96 s и присутан је у ланцу распада урана ^{235}U .

За разлику од прва два наведена изотопа, актинон (^{219}Rn) је углавном запостављен због веома кратког времена полураспада који јако ограничава његову миграцију, а такође и због релативно малог удела изотопа ^{235}U у природном урану (0.72%).

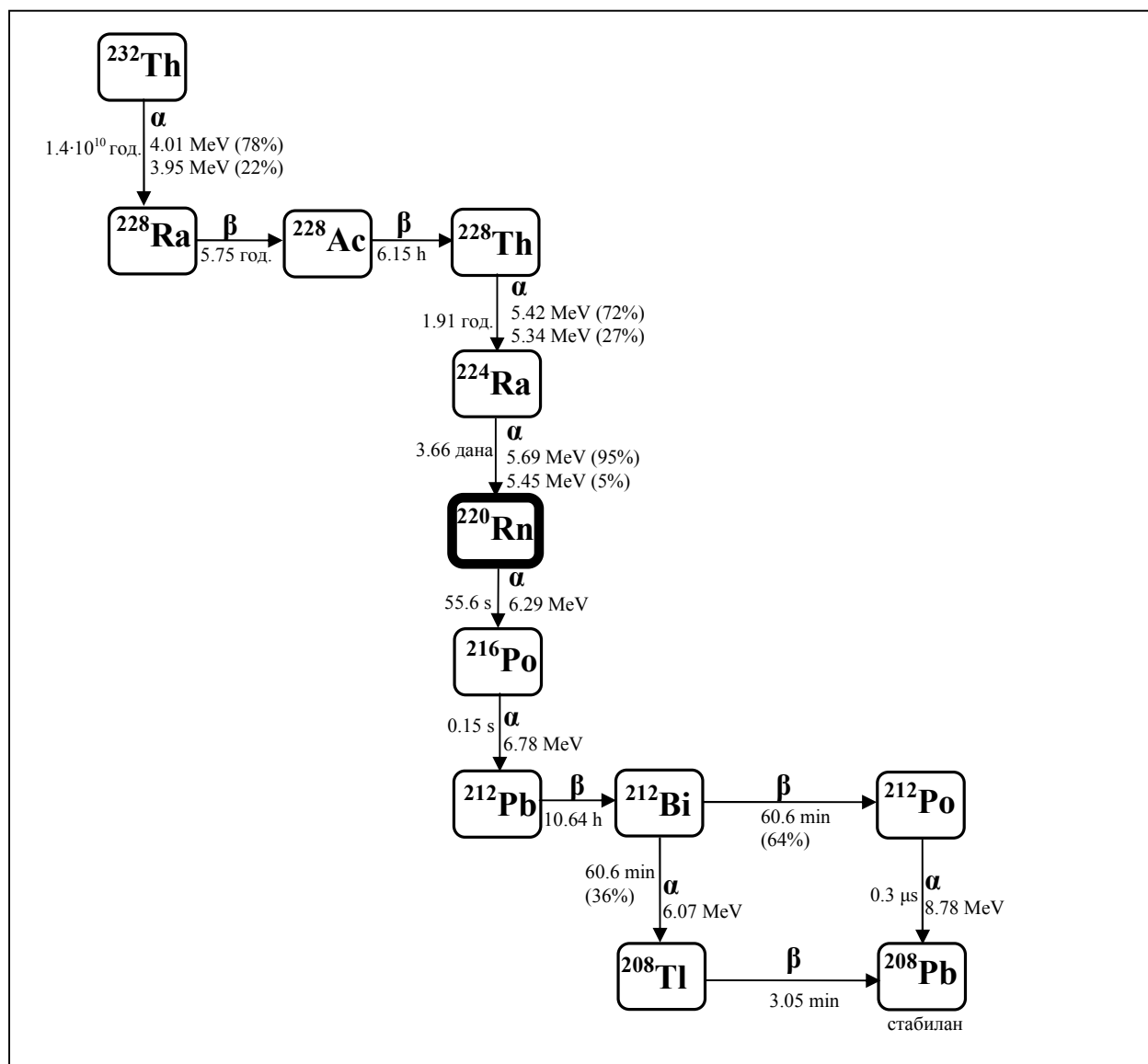
Слике 1.1 и 1.2 приказују шеме распада урана ^{238}U и торијума ^{232}Th . Све чланове низа распада урана ^{238}U карактерише масени број $A = 4n + 2$, где је n цео број из интервала од 51 до 59, док елементи торијумовог низа имају масени број $A = 4n$, где је n цео позитиван број који има вредности од 52 до 58. Оба низа се завршавају стабилним изотопима олова, ^{206}Pb и ^{208}Pb .

Концентрације природних радионуклида у тлу могу знатно варирати у зависности од састава и структуре тла, као и од особина и покретљивости самих радионуклида. Они се најчешће уграђују у стене и минерале у чијем саставу доминирају алкални и земноалкални метали. Гранити и гранитоидне стене најчешће садрже повишене концентрације урана и торијума, док се најмање концентрације радионуклида могу очекивати у карбонатним

стенама (кречњак и доломит). С обзиром да су изотопи радона (^{222}Rn и ^{220}Rn) једини гасовити продукти у приказаним низовима распада, уобичајено је да се они у природи налазе на местима на којима су локализоване наслаге урана и торијума. Међутим, постоји могућност да се радијум, који директно претходи радону, раствара, транспортује и таложи на другим местима, тако да радон може настати и на великим удаљеностима од наслага примордијалних радионуклида од којих потиче [Levinson и Coetzee, 1978].



Слика 1.1 Шема радиоактивног распада урана ^{238}U , са приказаним временима полураспада и енергијама емитованих алфа-честица. Грана алфа-распада бизмута ^{214}Bi је изостављена због мале вероватноће (0.04 %)



Слика 1.2 Шема радиоактивног распада торијума ^{232}Th , са приказаним временима полураспада и енергијама алфа-честица

Изотопи радона су алфа-емитери и распадају се, преко низа радиоактивних потомака, до стабилних изотопа олова. Велики значај радона ^{222}Rn заснива се на дугом времену полураспада које му омогућава изразиту мобилност и транспорт на релативно велике удаљености од места његовог настанка. То пружа основу како за штетне ефекте, тако и за корисне примене који се могу приписати овом изотопу. Он налази примену у хидролошким и геолошким истраживањима, указује на присуство наслага уранових руда, помаже у проучавању кретања и мешања гасова у атмосфери, предвиђању сеизмичких и вулканских процеса итд. [Fleischer, 1997]

Штетни ефекти радона се огледају у алфа, бета и гама зрачењу које настаје као последица његовог распада и распада његових краткоживећих потомака. Удисање повишених концентрација овог радиоактивног гаса и продукта његовог распада доводи до значајних оштећења осетљивих ткива респираторног система, што може резултирати појавом канцера плућа. При томе, радиоактивни потомци имају могућност таложенија у плућима, због чега је њихов штетни ефекат доминантан у поређењу са ефектима самог радона. Истраживања су показала да се 99% инхалационе дозе, узроковане присуством радона у ваздуху, приписује управо радиоактивним изотопима полонијума, бизмута и олова [Marsh и др, 2008].

За разлику од изотопа ^{222}Rn , торон (^{220}Rn) има знатно краће време полураспада, што ограничава његову миграцију од места настанка. То је разлог нехомогене расподеле у простору и експоненцијалног опадања концентрације овог гаса са удаљавањем од извора. Без обзира на ово ограничење, концентрације торона на одређеним локацијама могу бити веома високе, упоредиве или чак веће од концентрација изотопа ^{222}Rn , па се његово присуство често не може занемарити.

У даљем тексту, термин "радон" ће се односити искључиво на изотоп ^{222}Rn .

1.2 Извори и транспорт радона

Радон се ствара у минералима, као директни потомак радијума ^{226}Ra који настаје у природном радиоактивном низу урана ^{238}U . Садржај урана може драстично варирати, како у различитим минералима, тако и унутар исте групе минерала. Његове фракције се крећу у широком опсегу вредности од $\leq 3 \cdot 10^{-12}$ у кварцу, до 0.88 у уранијум-диоксиду, UO_2 . Значајне концентрације се могу очекивати у циркону, апатиту, сфену и аланиту, као и у минералима из групе фелдспата и лискуна [Fleischer, 1997].

Под утицајем различитих геолошких процеса, уран се може растварати, транспортовати и таложити у срединама које се најчешће карактеришу редукционим својствима [Åkerblom и Mellander, 1997]. Током процеса формирања тла, првобитне концентрације урана и радијума у стенама подлежу великим променама. Ерозијом, под утицајем воде и климатских фактора, честице минерала које садрже радионуклиде се могу преносити и акумулирати на удаљеним локацијама. Такође постоји могућност да се радијум ^{226}Ra , захваљујући свом релативно дугом периоду полураспада од 1620 година, транспортује и формира депозите независно од својих претходника. Транспорт радионуклида у знатној мери зависи од физичкохемијских особина тла, при чему велики значај има заступљеност честица глине и fine фракције, због могућности јачег везивања радионулида. Такође,

повећање киселости земљишта углавном доводи до повећања мобилности већине радионуклида [Стојановић и др, 1993].

Алфа-распадом радијума ^{226}Ra настаје радон ^{222}Rn . Чињеница да је концентрација радона у минералним зрнима много већа од концентрације у порама између зрна, указује на то да само мали проценат створеног радона има могућност да се ослободи и напусти зрна у којима настаје. Вредности концентрација радона које се мере у атмосфери, на отвореном простору, су најчешће мање од 10 Bq kg^{-1} [UNSCEAR, 2006], што је изузетно мало у поређењу са вредностима које се могу измерити у земном гасу и чак за неколико редова величине мање од концентрација у унутрашњости типичних минерала. Табела 1.1 приказује поређење типичних концентрације радона у различитим срединама [Fleischer, 1997].

Табела 1.1 Типичне концентрације ^{222}Rn [Fleischer, 1997]

Локација	Концентрација (број атома у cm^3)
Ваздух изнад океана	0.04
Ваздух изнад површине земље	4
Типичне куће у САД	20
Ваздух у земљи	20000
Унутрашњост типичних минерала	500000

Дифузија радона из тла зависи и од климатских фактора (притиска, температуре, ветрова итд.) који утичу на вертикални и хоризонтални транспорт радона и узрокују дневне и сезонске варијације концентрација овог гаса у атмосфери.

Радон у природи дифундује између различитих фаза. У случајевима када је ваздух, који садржи радон, у контакту са водом, радон продире у воду све до успостављања равнотежне концентрације чија се вредност смањује са порастом температуре, тако да се однос концентрација радона у води и ваздуху креће од 0.53 на 0°C до 0.11 на 100°C [Faul, 1954, Fleischer, 1997]. Насупрот томе, у случајевима када је вода у директном контакту са минералним честицама које садрже радијум, радон узмаком доспева у воду и тамо може достизати концентрације које значајно превазилазе равнотежу са околним ваздухом. Тако подземне воде, које долазе са изворишта богатих радијумом, при брзом кретању могу ослобађати велике количине радона и могу представљати значајан извор овог радиоактивног гаса у ваздуху.

1.2.1 Извори радона у затвореним просторијама

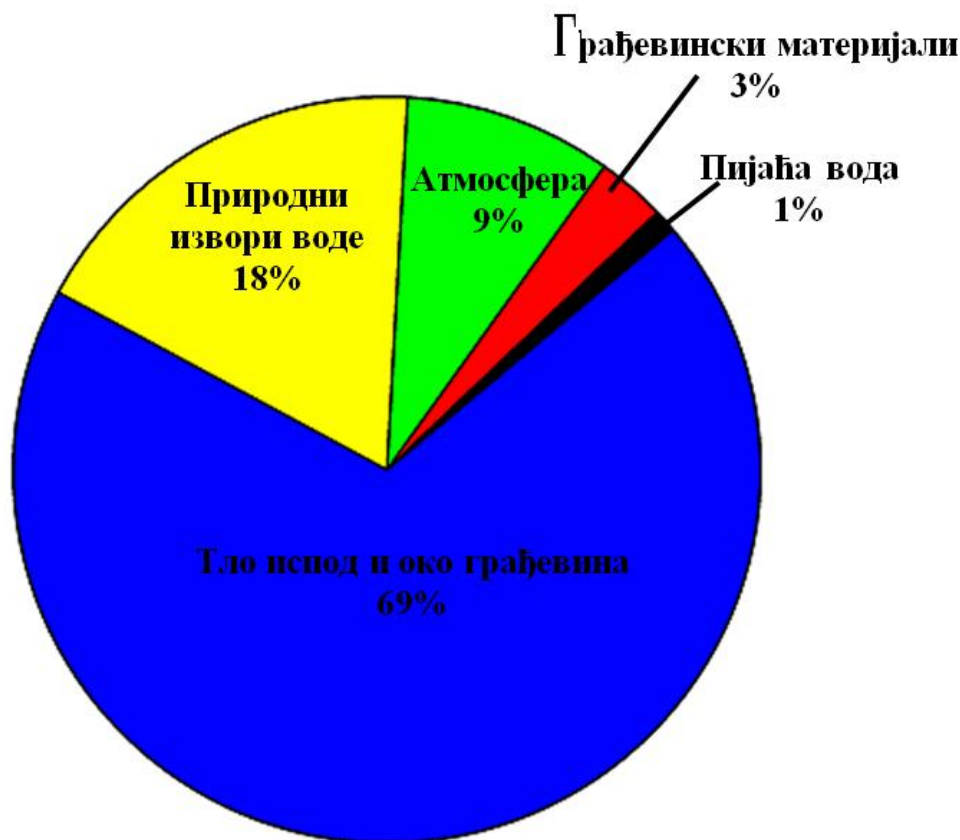
Услед акумулације, концентрације радона у затвореним просторијама могу достићи вредности које представљају значајну радијациону опасност, зависно од јачине извора радона, карактеристика објекта и животних навика становништва (вентилације, изолације, врсте грејања итд.).

Један од најзначајнијих извора радона у затвореним просторијама је тло испод и у непосредној околини посматраног објекта, из кога радон дифузијом и конвекцијом доспева кроз пукотине у атмосферу. Осим садржаја радијума, састав и структура тла су фактори који значајно утичу на концентрацију радона у атмосфери. Постојање фисура и раседа може бити узрок повећаних концентрација радона због олакшане дифузије, таложења радијума из подземних вода и повећаних концентрација угљен-диоксида и хелијума којима се радон транспортује ка површини земље [Hunyadi и др, 1995]. Порозност тла и грађевинских елемената кроз које радон доспева у ваздух затворених просторија су карактеристике које непосредно утичу на степен излагања становништва.

Вода која се користи у домаћинствима такође може представљати један од значајних извора радона у затвореним просторијама. То се посебно односи на воду која се допрема са бунара и изворишта лоцираних у областима богатим ураном и радијумом. Насупрот томе, вода из јавних водовода се током процеса обраде ослобађа радона и најчешће не садржи велике концентрације овог гаса.

Природни и вештачки грађевински материјали који се користе при изградњи објеката могу доприносити повишеним концентрацијама радона у затвореним просторијама. Њихов допринос зависи од минералног састава и садржаја радионуклида, али и од начина примене и количине у којој су заступљени. Типични природни материјали који садрже повишене концентрације урана су одређене врсте гранита, глине, али и велики број стена различитог састава које се локално користе у грађевинарству. Повишене концентрације урана и радијума се нарочито могу очекивати у вештачким грађевинским материјалима којима се, током процеса производње, додају одговарајуће секундарне сировине из индустријских поступака (пепео, шљака итд.). Технолошки процеси обраде материјала такође могу утицати на његове радиолошке карактеристике. Излагањем материјала високим температурама смањује се његова порозност, па тиме и ексхалација радона из њега.

Слика 1.3 приказује различите изворе и њихов релативни допринос концентрацији радона у затвореним просторијама [UNSCEAR, 2006].



Слика 1.3 Извори радона у затвореним просторијама [UNSCEAR, 2006]

1.2.2 Дневне и сезонске варијације концентрације радона

Краткотрајне (дневне) и дуготрајне (сезонске) варијације концентрације радона у затвореним просторијама зависе од спољашњих метеоролошких фактора, животних навика укућана, врсте објекта, доминантних извора радона, вентилационих система и врсте грејања присутног у објекту.

Сезонске варијације настају под утицајем вредности температуре, притиска и влажности ваздуха, које су карактеристичне за одговарајућа годишња доба. Уобичајено је да се највеће концентрације радона очекују у зимском периоду због повишеног атмосферског притиска и смањеног струјања ваздуха. Повећању концентрације доприносе и недовољно проветравање објеката и грејање засновано на сагоревању чврстих и течних горива, при чему долази до смањења притиска у просторијама и интензивнијег продирања радона из тла. Осим тога, повећана влажност ваздуха доводи до повећања концентрације аеросола и задржавања радонових потомака у затвореним просторијама. Концентрација радона у затвореним просторијама најчешће опада у пролеће, а најниже вредности се мере током летњих месеци.

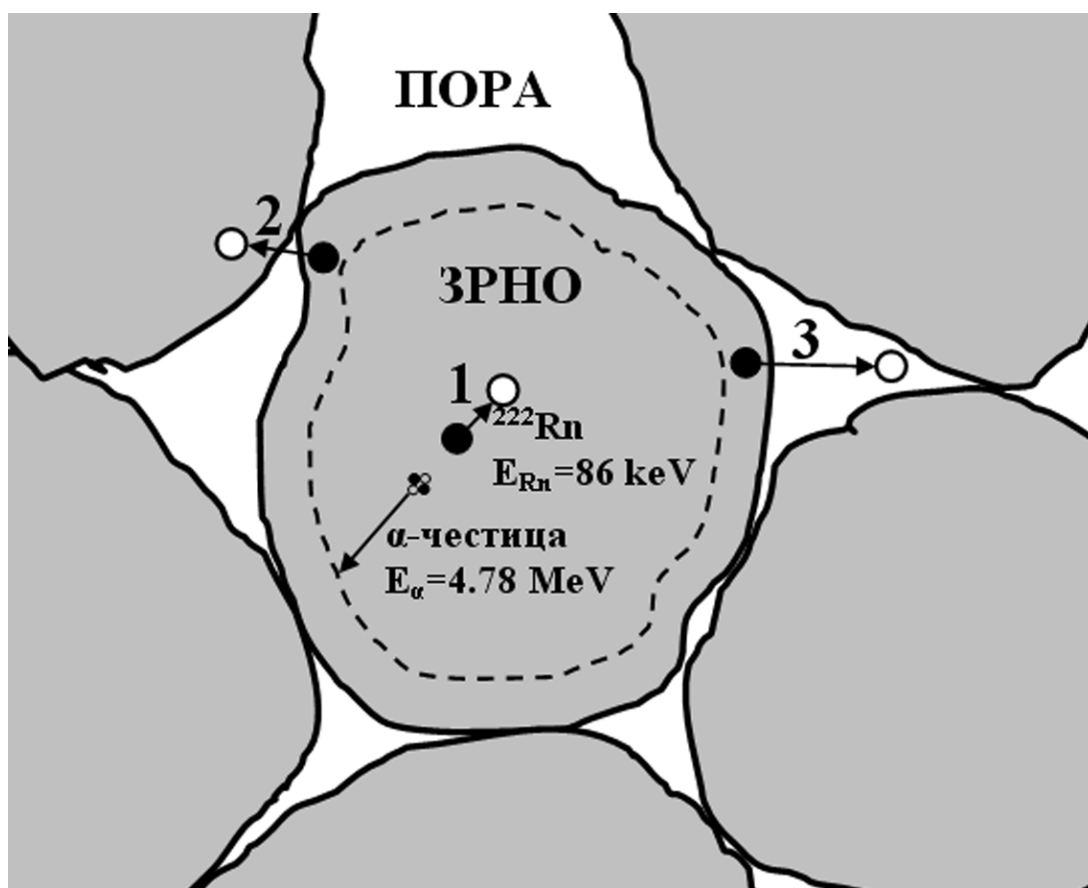
Дневне варијације настају услед дневних промена атмосферских прилика. Услед температурне инверзије и смањеног вертикалног струјања ваздуха, радон се задржава у

нижим слојевима атмосфере, па се највеће концентрације могу очекивати у току ноћи и у раним јутарњим часовима.

1.3 Еманација радона

Највећи проценат радона који настаје распадом радијума у минералним зрнима никада не напусти зрна у којима је створен, већ остаје заробљен у кристалној решетки минерала, до свог распада. Процес ослобађања радона из зрна и његов излазак у поре између зрна назива се **еманација**. Количник броја ослобођених атома и укупног броја створених атома представља **еманациону фракцију** (или еманациони коефицијент).

Еманација радона се заснива на процесима узмака и дифузије у материјалу зрна. Коефицијент дифузије радона у чврстим зрнима је веома низак ($10^{-31} - 10^{-69} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$), што одговара малим дифузионим дужинама ($10^{-13} - 10^{-32} \text{ m}$), па се може сматрати да је узмак радона доминантни процес који утиче на еманацију [Nazaroff и др., 1988; Nazaroff, 1992].



Слика 1.4 Узмак радона у зрнима чврстог материјала. Пуни кругови представљају места настанка радона, а празни кругови симболишу тачке заустављања: 1 – у унутрашњости зрна; 2 – у неком од суседних зрна; 3 – у пори између зрна. Испрекидана линија ограничава површински слој зрна дебљине једнаке домету радона

Распадом радијума ^{226}Ra емитује се алфа-честица са енергијом 4.78 MeV. На основу закона одржања импулса, очекује се да настали радон ^{222}Rn узмакне у супротном смеру, са почетном енергијом од 86 keV. У зависности од места настанка и правца узмака, реализује се једна од следећих могућности, које су илустроване на Слици 1.4:

1. узмакнути атом радона се зауставља у материјалу зрна у коме је настао (ово је у већини случајева највероватнији исход);
2. радон излази из зрна, пролази кроз пору, улеће у неко од суседних зрна и ту се зауставља;
3. атом радона, услед узмака, излази из зрна у коме је настао и зауставља се у пори између зрна или унутрашњој пори (у самом зрну) која је повезана са спољашњом.

Ако се занемари могућност дифузије радона у материјалу зрна, прва два исхода не доприносе еманационој фракцији јер радон остаје заробљен у зрну, до свог распада. Трећа могућност води до ослобађања радона тј. његове еманације, након чега атом постаје слободан за даљи транспорт кроз поре између зрна.

Еманација радона је сложен процес који се састоји из више компоненти и зависи од великог броја фактора, од којих су најважнији: величина и облик зрна, расподела радијума у зрнима, садржај влаге у материјалу, температура, величина пора између зрна, постојање мреже пора унутар самог зрна, састав и кристална структура материјала зрна итд. [Sakoda и др., 2011] Повећавањем слободне површине зрна, повећава се и еманациона фракција, док повећање запремине води до смањења еманације, нарочито у случају хомогене расподеле радијума унутар зрна.

Присуство влаге у порама материјала повољно утиче на еманацију због велике зауставне моћи воде (у поређењу са ваздухом) која омогућава да се већи број атома радона заустави у порама, пре него што успе да се угради у неко од суседних зрна [Nazaroff и др., 1988; Nazaroff, 1992; Sasaki и др, 2004; Sakoda и др., 2010a, 2011]. Као последица тога, флуks радона који се ослобађа са површине узорка расте са порастом концентрације воде у материјалу све до достизања сатурационе вредности еманационе фракције, након чега почиње да опада због мањег коефицијента дифузије радона у води у поређењу са ваздухом. Утицај влаге на еманацију и ексхалацију радона је потврђен многобројним експерименталним истраживањима [Strong и Levins, 1982; Barton и Ziemer, 1986; Bossew, 2003; Hassan; 2014].

У експериментима је такође запажено да пораст температуре води до повећања еманације и ексхалације, што се може објаснити смањењем физичке адсорпције радона на зрнима, која се може догодити током дифузије кроз поре материјала [Iskandar и др., 2004; Strandén и др, 1984]. На јако високим температурама (преко неколико стотина степени)

долази до значајног повећања дифузионог коефицијента радона у чврстим материјалима, што битно олакшава ослобађање радона из зрна [Beckman и Balek, 2002; Balek и Beckman, 2005; Sakoda и др., 2011].

С обзиром да је димет узмакнутих атома радона у чврстим материјалима веома мали (за уобичајене минерале износи 20 – 70 nm [Sasaki и др., 2004]), расподела атома радијума унутар зрна има велики утицај на еманацију радона. Ако се занемари ефекат дифузије и могућност постојања унутрашњих пора у самом зрну, може се претпоставити да радон, који настаје на дубинама већим од димета у датом материјалу, остаје заробљен у унутрашњости зрна и његова вероватноћа еманације је једнака нули. Из тог разлога су вредности еманационе фракције за површинску расподелу радијума у зрну за неколико редова величине веће од оних које се добијају ако се претпостави хомогена расподела по читавој запремини. Ова разлика постаје све већа са порастом величине зрна.

1.4 Ексхалација радона

Сви материјали који садрже радијум представљају потенцијалне изворе радона који се, у мањој или већој мери, континуирано ослобађа у околни простор. Процес емисије радона из узорка се назива ексхалација радона и квантитативно се описује јачином ексхалације. **Јачина ексхалације** радона се дефинише као количина радона која се ослободи са јединичне површине (или јединичне масе) узорка у јединици времена. Уобичајено је да се **површинска јачина ексхалације** [$\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$] користи за чврсте тј. компактне узорке, док се ексхалација из прашкастих (грануларних) узорка најчешће изражава помоћу **масене јачине ексхалације** [$\text{Bq kg}^{-1} \text{s}^{-1}$].

Јачина ексхалације радона зависи од еманационе фракције и разлике између концентрација радона у порама материјала и у спољашњој средини [De Martino и др., 1998].

2. МЕРЕЊЕ КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНА

Мерење концентрације радона се заснива на детекцији зрачења насталог при распаду самог радона или његових краткоживећих потомака који су интензивни алфа, бета и гама-емитери. У зависности од потреба, мерење се може вршити применом активних или пасивних метода.

2.1 Активне методе мерења

Активне методе подразумевају коришћење активних електричних компоненти и омогућавају обраду података у току самог процеса мерења. Најчешће се примењују у краћим временским интервалима и пружају информације о вредностима и варијацијама тренутних концентрација радона у посматраној средини. За разлику од пасивних мерења код којих радон, под природним условима, слободном дифузијом испуњава ефективну запремину детектора, конструкција активних уређаја најчешће укључује механизме (пумпе) које увлаче радон у систем за детекцију. Електронски уређаји, који се у данашње време најчешће користе за активна мерења концентрације радона, заснивају се на принципу сцинтилационих ћелија, јонизационих комора или чврстих алфа детектора.

Метод активног мерења концентрације радона, коришћен у овом раду, реализује се помоћу уређаја RAD7 (DurrIDGE Company Inc.) који је приказан на Слици 2.1. Уређај поседује унутрашњу ћелију облика полусфере запремине 0.7 dm^3 , чија је унутрашњост обложена проводним материјалом и у чијем се центру налази алфа детектор. Пумпа увлачи ваздух (претходно исушен помоћу дехидратора - CaSO_4) у унутрашњу ћелију кроз посебне филтере који онемогућавају пролазак радонових и торонових потомака. Услед велике разлике потенцијала између проводног материјала и детектора ($2000 - 2500 \text{ V}$) у запремини унутрашње ћелије уређаја се ствара јако електрично поље које привлачи и прикупља позитивне јоне на детектору. Полонијум ^{218}Po , који настаје распадом радона ^{222}Rn , је позитивно наелектрисан. Он се накупља на активној површини детектора где се распада и емитује алфа-зрачење које у детектору ствара електричне сигнале пропорционалне енергији алфа-честица. Уређај појачава, филтрира и разврстава сигнале на основу њихове јачине. Захваљујући томе, RAD7 има могућност раздвајања сигнала који потичу од различитих потомака, па самим тим омогућава истовремено, независно мерење концентрација радона и торона (али не и њихових потомака) у ваздуху.

Уређај је фабрички калибрисан и процењено је да је укупна калибрациона несигурност мања од 5%.



Слика 2.1 Уређај RAD7 (Durridge Company Inc.) за активно мерење концентрације радона

2.2 Пасивне методе

С обзиром на значајне дневне и сезонске варијације концентрације радона у ваздуху, мерења која су ограничена на кратке временске интервале не омогућавају поуздану процену излагања и здравственог ризика који потиче од овог природног радиоактивног гаса. Одређивање средње концентрације радона у дужим временским интервалима најчешће се врши применом пасивних, интеграционих метода.

При реализацији пасивних метода мерења, детектори се најчешће смештају у кућишта тј. коморе одговарајућих облика и димензија, опремљене отворима кроз које радон дифузијом испуњава унутрашњу запремину. Ови отвори се најчешће прекривају филтерима који представљају баријеру за пролазак радонових потомака. Најоптималнији облик и димензије коморе се одређују на основу облика и димензија самих детектора, као и домета честица зрачења које емитују радон и његови потомци.

Присуство торона представља значајан проблем који се јавља при мерењу концентрације радона у ваздуху. Један од начина решавања овог проблема је спречавање уласка торона у детекциону запремину. С обзиром да радон и торон имају исти дифузиони коефицијент у датој средини, а веома различите периоде полураспада (3.824 дана и 55.6 s, респективно), постављањем дифузионе баријере на уласку у комору се може постићи да се највећи део торона распаде пре проласка кроз баријеру. Најједноставнија баријера може бити

и стуб ваздуха одговарајуће дужине (30 – 40 cm), па се дискриминација торона може постићи и адекватном конструкцијом самог кућишта детектора [Monnin и Seidel, 1997].

Једно од практичних решења код којих конструкција кућишта детектора пружа могућност истовременог мерења концентрације радона и торона у ваздуху су такозвани UFO-дозиметри, конструисани у Националном Институту за Радиолошке Науке у Јапану [Doi и др., 1994]. Ови дозиметри се заснивају на поликарбонатним траг детекторима постављеним у коморе које се састоје од две полусфере, са полупречницима 120 и 75 mm. Горња полусфера (120 mm) има осам отвора за ваздух који се прекривају филтер-папиром како би се спречио улазак радонових и торонових потомака у комору. Брзина размене ваздуха у горњој полусфери је 16 пута у току једног часа, тако да концентрације радона и торона у горњој комори, у поређењу са спољашњим концентрацијама, износе 99% и 26%, респективно [Doi и др., 1992]. Доња полусфера (75 mm) има само тачкасти отвор (пречника 1 mm) који је повезује са горњом полусфером и који омогућава размену ваздуха брзином од 0.38 h^{-1} . Због релативно кратког времена полураспада торона, проценат овог гаса који доспева у доњу полусферу износи само 0.2% [Doi и др., 1992], док је проценат радона далеко већи. Два поликарбонатна детектора постављају се између две полусфере, при чему је активна површина једног детектора окренута навише (изложена је радону и торону), док активна површина другог детектора "гледа" ка мањој полусфери и изложена је само радону. Након излагања и нагризања, одређивање концентрације радона у ваздуху се врши на основу броја трагова прочитаних са доњег поликарбонатног детектора, док густина трагова на горњем детектору, умањена за одговарајући допринос радона, омогућава процену концентрације торона у ваздуху.



Слика 2.2 Дискриминативни радон/торон UFO-дозиметри

Слика 2.2 приказује један од UFO-дозиметара који су у овом раду коришћени за пасивно мерење концентрације радона, описано у Глави 11.

Други начин решавања проблема присуства торона при мерењима радона је коришћење детектора који имају могућност пружања различитог одговора на зрачења која потичу од радона и торона.

Пасивно мерење концентрације радона у ваздуху се најчешће заснива на коришћењу чврстих траг детектора код којих се густина трагова, ρ [track/cm²], која се читава на детекторима након нагризања, повезује са концентрацијом радона на следећи начин:

$$\rho = k \cdot \bar{C}_{Rn} \cdot t_E \quad (2.1)$$

где је k калибрациони коефицијент чија је системска јединица m , мада је у чешћој употреби (track·cm⁻²)/(Bq·m⁻³·day). $\bar{C}_{Rn}$ [Bq·m⁻³] представља средњу концентрацију радона којој је детектор био изложен током периода експозиције, t_E :

$$\bar{C}_{Rn} = \frac{\int_0^{t_E} C_{Rn}(t) dt}{t_E} \quad (2.2)$$

У општем случају, укупна густина трагова $\rho(\vec{r})$ у некој тачки детектора дефинисаној вектором положаја $\vec{r}$ представља резултат суме свих алфа-емисија које у датој тачки могу произвести видљиве трагове [Ilic и Sutej, 1997]:

$$\rho(\vec{r}) = \sum_i \rho_i^V(\vec{r}) + \sum_i \rho_i^P(\vec{r}) \quad (2.3)$$

где је $\rho_i^V(\vec{r})$ допринос густини трагова који потиче од радона и његових потомака присутних у ваздуху, а $\rho_i^P(\vec{r})$ је густина трагова коју дају потомци радона наталожени на зидовима кућишта детектора и површини самог детектора (“plate out”).

Правилна калибрација детектора тј. тачно одређивање калибрационог коефицијента је важан предуслов за ефикасно спровођење мерења. Калибрациони коефицијент зависи од карактеристика детектора, облика и димензија коморе, услова нагризања, критеријума читавања трагова итд. Његово одређивање се може вршити експериментално или теоријски – применом различитих аналитичких приступа или нумеричких метода [Askari и др, 2008; Nikezic и др, 1992, 1993, 1995; Sima 1995, 2001; Nikezic и Yu, 1998; Palacios и др, 2008; Patiris и др, 2007].

3. ЧВРСТИ НУКЛЕАРНИ ТРАГ ДЕТЕКТОРИ

Нуклеарни траг детектори су детектори чији се механизми детекције заснивају на регистровању трагова наелектрисаних честица у различитим срединама. У ову групу детектора спадају маглени, мехурасте и варничне коморе [Wilson, 1951; Shutt, 1967], које раде на принципу засићене паре, прегрејане течности или јонизације гасова. Посебну групу нуклеарних траг детектора чине чврсти траг детектори (SSNTD – Solid State Nuclear Track Detectors) код којих се за детекцију честица користе чврсти диелектрични материјали.

Откриће чврстих траг детектора се везује за 1958. годину, када је Young [Young, 1958] открио прве трагове на кристалу LiF који је, након контакта са уранском фолијом и озрачивања термалним неутронима, био изложен дејству агресивног хемијског раствора. Годину дана касније, Silk и Barnes су помоћу електронског микроскопа уочили трагове у лискуну [Silk и Barnes, 1959], а Fleischer, Price и Walker су нешто касније започели опсежна истраживања ове појаве примењујући исти метод и на друге материјале [Fleischer и др, 1965].

На основу механизма формирања трагова и понашања при нагризању, чврсти траг детектори се могу класификовати у три групе [Guo и др, 2012]:

- кристали (лискун, циркон, апатит итд.);
- стакла (природна и вештачка);
- полимери (полиалил-дигликол-карбонат, поликарбонати, целулоза-нитрат итд.).

Чврсти траг детектори налазе широку примену у радонским мерењима због својих малих димензија, једноставног коришћења, ниске цене и могућности релативно лаке обраде и читавања резултата. С обзиром да спадају у интеграционе методе, њихова прецизност се може повећати једноставним повећањем времена излагања, па су погодни и за мерења ниских концентрација.

3.1 Формирање латентних трагова у чврстим траг детекторима

Коришћење чврстих траг детектора се заснива на чињеници да тешка наелектрисана честица (маса протона или веће), при проласку кроз материју, ствара оштећења у виду интензивних јонизација и екситација дуж своје путање. На тај начин настаје област која садржи велики број слободних радикала и других хемијских врста и која се назива латентни

траг. Када се материјал, који садржи поменути оштећења, изложи дејству агресивних хемијских раствора (најчешће раствора NaOH и KOH), долази до његовог нагризања, при чему се нагризање одвија брже у областима латентних трагова. На тај начин настају трагови који су видљиви под оптичким микроскопом и чија се густина и особине могу довести у везу са врстом и карактеристикама честица којима је материјал био изложен. То омогућава коришћење траг детектора у дозиметрији протона, алфа-честица, фисионих продуката и других тешких јона.

Могућност настанка и визуелизације трагова је посебно изражена код органских полимера чији се молекули састоје из дугих ланаца. Ефекат је карактеристичан искључиво за диелектрике, с обзиром да у проводницима и полупроводницима процес рекомбинације јона нарушава стабилност латентних трагова. Један од најпознатијих и најосетљивијих траг детектора, који се често користи за мерења концентрација радона, је CR-39 детектор који је по саставу полиалил-дигликол-карбонат ($\text{C}_{12}\text{H}_{18}\text{O}_7$). Осим њега, у честој употреби су и детектори засновани на целулози-нитрату, познати под називом LR 115 ($\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_9\text{N}_2$), као и поликарбонатни Макрофол детектори ($\text{C}_{16}\text{H}_{14}\text{O}_3$).

Процес формирања трагова тешких наелектрисаних честица у материјалима се одвија у две фазе. У првој, физичкој фази, која се дешава јако брзо (у интервалима реда величине пикосекунде), долази до предаје енергије наелектрисане честице атомима који окружују њену путању и до њеног заустављања. Ово успоравање и предаја енергије се углавном заснива на Кулоновим интеракцијама са електронима околних атома, док су интеракције са језгрима јако ретке. Захваљујући томе, честица не одступа много од свог првобитног правца кретања, па се може претпоставити да је њено кретање у материјалу детектора праволинијско.

Успоравање честице и њен губитак енергије при проласку кроз материјал се може изразити познатом Bethe–Bloch формулом [Bethe, 1930; Bloch, 1933]:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{Z^2 e^4}{4\pi\epsilon_0^2 m_0 v^2} N \left[\ln \frac{2m_0 v^2 W_{\max}}{\bar{I}^2 (1 - \beta^2)} - 2\beta^2 - \delta - U \right] \quad (3.1)$$

где $(-dE/dx)$ означава зауставну моћ, Z је наелектрисање упадне честице, v је њена брзина, β представља количник брзине честице и брзине светлости у вакууму ($\beta = v/c$), а m_0 и N представљају масу мировања и концентрацију електрона у материјалу, респективно. $W_{\max}$ означава максимални трансфер енергије, а $\bar{I}$ је средња енергија екситације. Корекција δ се односи на ефекте поларизације средине.

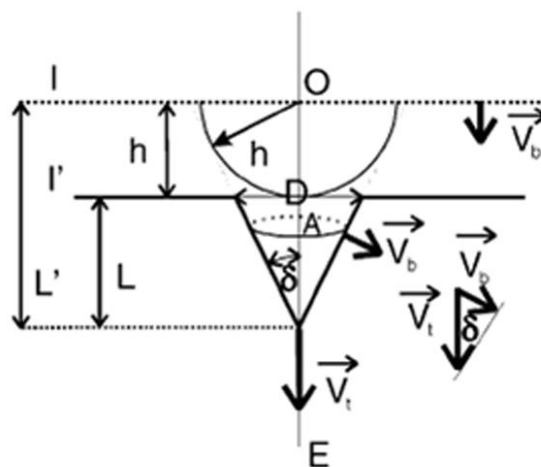
Једначина је добијена разматрањем квантних и релативистичких ефеката, а односи се искључиво на интеракције наелектрисане честице са електронима. Њена примена је ограничена и не може у потпуности описати сложене процесе који се јављају при проласку наелектрисане честице кроз материјал. Важан недостатак је понашање представљне функције у области ниских енергија. Осим тога, при извођењу формуле у обзир нису узети додатни процеси који се јављају при малим брзинама наелектрисане честице, као што су губљење и захвати електрона који се дешавају при интеракцији честице са атомима средине.

Услед интензивних јонизација изазваних проласком тешке наелектрисане честице, у материјалу детектора долази до стварања великог броја слободних електрона који даље могу изазивати нове јонизације и ексцитације околних атома. Највећи број електрона и "оштећених" молекула настаје у непосредној близини путање честице, мада се неки електрони могу и значајно удаљити из ове области (δ -зраци).

У другој, физичкохемијској фази формирања трагова, долази до интеракција оштећених молекула у области која окружује путању честице, при чему настају нове хемијске врсте. При нагризању детектора, раствор за нагризање јаче интерагује са овим хемијским врстама него са материјалом неоштећеног детектора.

3.2 Геометрија развоја трага

Основни појмови којима се описује процес развоја трагова у чврстим траг детекторима се могу представити на основу Слике 3.1 која илуструје најједноставнији случај, када наелектрисана честица продире под правим углом у односу на површину детектора [Nikezic и Yu, 2004].



Слика 3.1 Геометрија развоја трага за случај нормалног упада честице на површину детектора [Nikezic и Yu, 2004]

На слици је са I обележена почетна површина детектора, а I' је површина након нагризања. Брзина V_t представља брзину нагризања детектора дуж путање честице (track etch rate), а V_b означава брзину нагризања неоштећених делова детектора (bulk etch rate). O је тачка уласка честице у материјал детектора, а E је тачка њеног заустављања у материјалу (дужина дужи OE је једнака домету честице у материјалу). D означава дијаметар отвора трага, а величина $h = V_b \cdot t$ (где је t време нагризања) представља дебљину скинутог слоја и једнака је растојању између површина I и I' . L' је укупно растојање које раствор за нагризање прелази дуж трага честице, а L је дубина трага.

Једна од најзначајнијих величина која утиче на процес развијања трага је однос брзина нагризања $V = V_t / V_b$. Брзина V_b зависи од врсте детектора и услова под којима се врши нагризање (температура, концентрација раствора), док брзина V_t у датом материјалу и под датим условима, зависи од врсте наелектрисане честице и њене енергије. Услов $V > 1$ мора бити испуњен како би нагризање имало смисла и како би се обезбедила жељена визуелизација трага.

Посматрано у три димензије, траг честице постаје конус са углом развијања δ који се, на основу геометрије приказане на Слици 3.1, може изразити на следећи начин:

$$\sin \delta = \frac{1}{V} \quad (3.2)$$

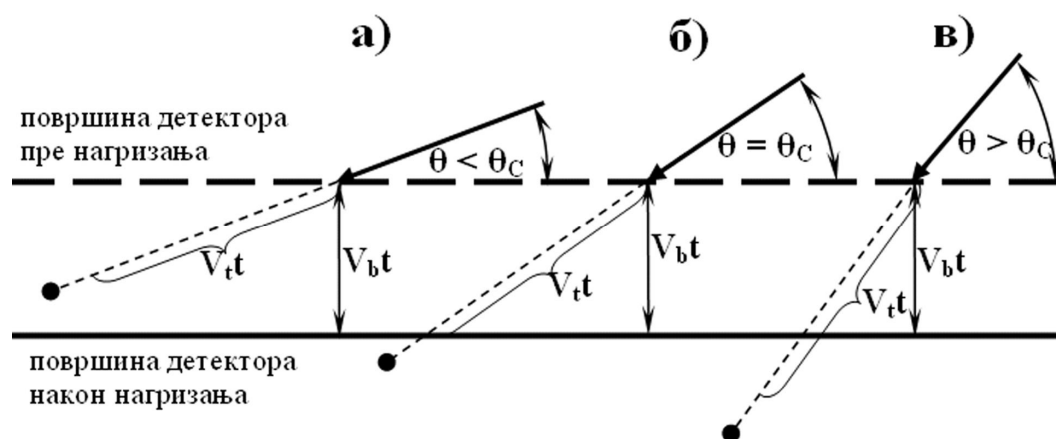
У случају када нагризање траје превише дуго тј. дуже од времена потребног да нагризајући раствор стигне до краја путање честице (тачка E на Слици 3.1), брзина нагризања у свим правцима постаје једнака и врх трага почиње да добија облик полусфере, па код "пренагрижених" детектора трагови могу бити тешки за читавање или чак потпуно невидљиви услед губитка контраста.

3.3 Критични угао и зависност детекције од енергије честица

Могућности коришћења траг детектора зависе од врсте и особина честица које се детектују, материјала који се користи за детекцију и услова нагризања који се примењују при развијању трагова.

Као што је већ поменуто, однос брзина нагризања V_t и V_b је од великог значаја за процесе развоја и визуелизације трагова. Овај однос одређује критични угао детекције, θ_c , који се може објаснити на основу Слике 3.2. Ако је t време нагризања, растојање које раствор

за нагризање пређе дуж трага честице је $V_t t$, а дебљина скинутог слоја у односу на првобитну површину детектора се може изразити производом $V_b t$. Ако се са θ обележи упадни угао честице у односу на површину детектора, на основу једноставне геометрије се може закључити да ће, у случајевима када је $V_t t \sin \theta < V_b t$, траг бити "избрисан" нагризањем (Слика 3.2 а)). Дакле, угао $\theta_c = \arcsin \frac{V_b}{V_t}$, приказан на Слици 3.2 б), представља критични угао детекције. Све честице које на површину детектора падају под углом $\theta \leq \theta_c$ неће дати видљиве трагове након нагризања и неће бити детектоване.



Слика 3.2 Упад честице на површину детектора под углом: а) мањим од критичног; б) једнаким критичном; в) већим од критичног угла. У овој области је уобичајено да се угао мери од површине детектора, а не у односу на нормалу на детектор

У зависности од врсте материјала који се користи као детектор, могућност регистровања наелектрисаних честица зависи и од ограничене зауставне моћи или јачине примарне јонизације која мора бити изнад одговарајуће граничне вредности. Гранична вредност јачине примарне јонизације зависи од врсте детектора, поступка производње, услова нагризања и термичког третирања детектора пре и након озрачивања [Griffith и Tommasino, 1990]. У поређењу са стаклом и минералним кристалима, полимери (пластике) имају знатно нижи праг детекције, па се могу користити и за детектовање јона ниског атомског броја, као што су α -честице или чак протони. Постојање граничне вредности примарне јонизације има за последицу веома важну особину нуклеарних траг детектора – могућност дискриминације лаких енергетских честица тј. веома слаба осетљивост на бета и гама зрачења.

Опсег енергија честица које се могу регистровати помоћу чврстих траг детектора зависи од врсте честица и врсте детектора који се користи за детекцију. У случају детекције алфа-честица, CR-39 детектори готово да немају ограничења и осетљиви су на све енергије од приближно 0.1 до преко 20 MeV [Durrani и Bull, 1987]. LR 115 детектори су мање

осетљиви и имају могућност детекције алфа-честица са енергијама у интервалу 1.2 – 3.9 MeV. Границе детекције LR 115 се мењају са променом услова нагризања и читавања трагова, због чега се различите вредности могу наћи у литератури [Benton, 1968; Ilic и Durrani, 2003; Еарран и Маууа, 2004; Yu и Nikezic, 2009]. Поликарбонатни детектори региструју честице са енергијама од приближно 0.2 до 3 MeV [Durrani и Bull, 1987].

3.4 Хемијско нагризање

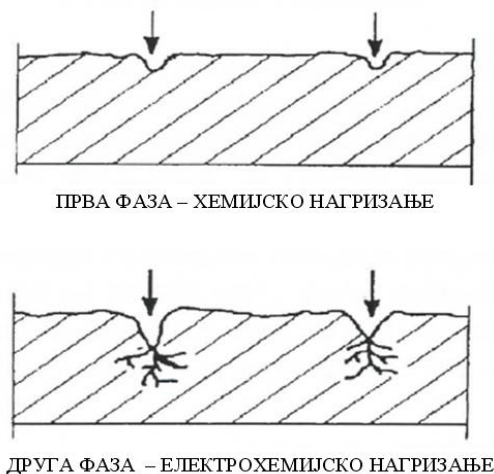
Основна техника развијања трагова честица у чврстим траг детекторима је хемијско нагризање. Оно се најчешће врши у растворима NaOH или KOH, концентрације од 2 до 6 M, док је типично трајање нагризања од 2 до 6 h [Durrani, 1997]. С обзиром да брзина нагризања експоненцијално расте са порастом температуре, неопходно је нагризање вршити у воденим купатилима, при строго контролисаним условима. Температуре при којима се најчешће врши нагризање су из интервала од 40° до 70°C. Код читавања трагова помоћу оптичких микроскопа, довољно је при нагризању одржавати константну температуру са тачношћу од ± 1 °C [Guo и др, 2012]. Хомогеност температуре се може обезбедити мешањем раствора помоћу мешалица. Повећањем концентрације раствора, температуре и времена нагризања повећава се и величина трагова. Након нагризања, детектори се испирају дестилованом водом како би се са њих уклонили остаци раствора, а затим следи њихово сушење и читавање трагова под оптичким микроскопом. Дијаметри хемијски нагризаних трагова су најчешће величине неколико микрометара, мада продуженим нагризањем могу нарасти и до 50 μm или више [Durrani, 1997].

3.5 Електрохемијско нагризање

Метод електрохемијског нагризања детектора (ECE - electrochemical etching) је први предложио Tommasino, 1970. године [Tommasino, 1970]. Циљ ове методе је развијање трагова честица у детекторима до димензија које су видљиве голим оком, тако да се њихова анализа и бројање могу лако вршити помоћу уређаја са малим увећањем.

При електрохемијском нагризању, пластични детектор који у себи садржи трагове наелектрисаних честица поставља се као баријера која дели ћелију испуњену електролитима (најчешће растворима NaOH или KOH) на два дела. Сваки од ова два дела садржи по једну электроду од нерђајућег челика. На електроде се примењује високофреквентни напон који ствара јако електрично поље јачине 30 - 50 kV cm⁻¹. Развијање трагова се врши удруженим

деловањем раствора за нагризање и примењеног високог напона. Етанол, који се најчешће додаје раствору за нагризање, има улогу да уклања нагрижени део детекторског материјала и спречи његово нагомилавање при врху трагова, што би ометало даље развијање. Хемијским нагризањем се стварају конусни трагови на чијим се врховима јавља јако електрично поље, па долази до пробоја детектора. Ове две фазе су илустроване на Слици 3.3.



Слика 3.3 Две фазе електрохемијског нагризања

Електрохемијским нагризањем се добијају трагови карактеристичног изгледа (Слика 3.4), величине до неколико стотина микрометара. Недостатак методе је у томе што густина трагова на детектору мора бити мања од $\sim 10^5 \text{ cm}^{-2}$ [Guo и др, 2012].



Слика 3.4 Трагови алфа-честица радона и његових потомака на Макрофол детектору, након електрохемијског нагризања. Фотографија је добијена у Лабораторији за радијациону физику ПМФ-а Универзитета у Крагујевцу

4. МЕРЕЊЕ КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНОВИХ И ТОРОНОВИХ ПОТОМАКА У ВАЗДУХУ

4.1 Понашање радонових и торонових потомака у затвореним просторијама

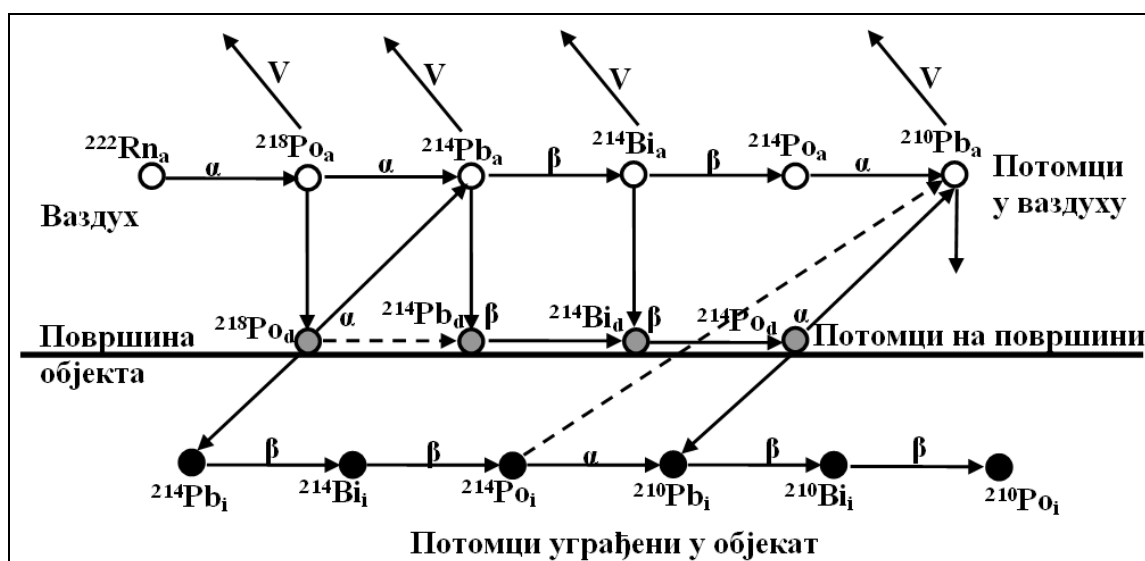
Радон ^{222}Rn се распада емисијом α честице енергије 5.49 MeV, при чему настаје полонијум ^{218}Po . Он је α емитер и са периодом полураспада од 3.1 минут прелази у олово ^{214}Pb , емитујући α честицу енергије 6.00 MeV. Олово ^{214}Pb је β и γ емитер, има време полураспада 26.8 минута и распада се до бизмута ^{214}Bi . ^{214}Bi такође подлеже β распаду ($T_{1/2}=19.9\text{ min}$), при чему настаје изотоп полонијума ^{214}Po . Он готово тренутно ($T_{1/2}=164\text{ }\mu\text{s}$) емитује α честицу енергије 7.69 MeV и прелази у релативно дугоживећи ($T_{1/2}=22.3\text{ године}$) изотоп олова ^{210}Pb , који се кроз низ нових дезинтеграција, преко ^{210}Bi и ^{210}Po , трансформише до стабилног изотопа ^{206}Pb .

Торон, ^{220}Rn , је α емитер, који емитује честицу енергије 6.29 MeV и, са периодом полураспада од 55.6 s, прелази у полонијум ^{216}Po . Он се даље релативно брзо ($T_{1/2}=0.145\text{ s}$) распада до олова ^{212}Pb , а ова трансформација је праћена емисијом α честице енергије 6.78 MeV. ^{212}Pb се кроз β распад ($T_{1/2}=10.64\text{ h}$) трансформише у ^{212}Bi , при чему долази и до емисије интензивног γ зрачења. Бизмут ^{212}Bi ($T_{1/2}=60.6\text{ min}$) се распада на два начина: једна грана распада (36%) је праћена емисијом α честице са енергијом 6.07 MeV, при чему настаје талијум ^{208}Tl , док друга грана (64%) води у β распад и настанак изотопа полонијума ^{212}Po . Први потомак је β , а други α емитер и оба се (са периодима полураспада од 3.05 min и 0.3 μs , респективно) трансформишу у стабилан изотоп олова ^{208}Pb .

Потомци радона и торона који настају у ваздуху су најчешће позитивно наелектрисани и интерагују са околним атомима и молекулима. При интеракцији са молекулима водене паре долази до формирања кластера који представљају слободне тј. неприпојене потомке, а имају димензије 0.5 - 5 nm [Porstendörfer, 1994]. Они се, при даљим сударима, припајају атмосферским аеросолима и тако формирају припојену фракцију. Припојени и слободни потомци имају могућност таложења на различитим површинама унутар затворених просторија, при чему је брзина депозиције већа код неприпојених потомака [Stevanovic и др, 2009]. Поједини потомци, настали при α распадима, добијају довољну енергију узмака која им омогућава да се одвајају од аеросола или уграђују у

различите површине. Вентилација и таложење на површинама ремете успостављање радиоактивне равнотеже између радона или торона и њихових потомака у ваздуху.

Слика 4.1 илуструје процесе радиоактивног распада, депозиције, одвајања и уграђивања радонових потомака у површину објекта [Nikezic и Yu, 1999]. Изотопи ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi и ^{210}Pb се из ваздуха затворених просторија могу уклањати вентилацијом или се таложити на површинама. Атоми ^{214}Pb , настали алфа-распадом депонованог ^{218}Po , добијају одговарајућу енергију узмака која им, зависно од правца узмака, омогућава да се одвајају од површине и враћају у ваздух или се уграђују у танки површински слој објекта. Вероватноћа да се ови атоми након узмака задрже на површини објекта је занемарљива. На сличан начин, при распаду ^{214}Po на површини објекта, новонастали атоми ^{210}Pb се могу одвајати од површине или се уграђивати у њу. Изотоп ^{210}Pb , настао од ^{214}Po уграђеног у површински слој објекта, такође може при узмаку доспети у ваздух, али је вероватноћа овог процеса изузетно мала. Енергија узмака изотопа који настају као продукти бета-распада није довољна да омогући уграђивање ових потомака у објекат или њихово одвајање од површине.



Слика 4.1 Понашање радонових потомака у близини површине објекта [Nikezic и Yu, 1999]. Индекси имају следећа значења: *a* - атоми у ваздуху; *d* – атоми депоновани на површини; *i* – атоми уграђени у објекат. Стрелице илуструју следеће процесе: $\rightarrow$ радиоактивни распад; $\downarrow$ депозиција на површини; $\swarrow$ уграђивање у површину; $\nearrow$ - одвајање од површине; $\nwarrow$ уклањање вентилацијом. Испрекидане стрелице означавају процесе са малом вероватноћом

Понашање радона, торона и њихових потомака у затвореним просторијама се може описати коришћењем Јакобијевог модела [Jacobi, 1972], заснованог на диференцијалним једначинама:

$$\frac{\partial N_i^u}{\partial t} = \lambda_{i-1} N_{i-1}^u + p_{i-1} \lambda_{i-1} N_{i-1}^a - (\lambda_i + \lambda_a + \lambda_v + \lambda_d^u) N_i^u \quad (4.1)$$

$$\frac{\partial N_i^a}{\partial t} = \lambda_a N_i^u + (1 - p_{i-1}) \lambda_{i-1} N_{i-1}^a - (\lambda_i + \lambda_v + \lambda_d^a) N_i^a \quad (4.2)$$

где N_i представља концентрацију i -тог потомка (за радон и торон $i = 0$, $N_0 = N_0^u$ и $N_0^a = N_0^d = 0$), а индекси u и a означавају слободну (“unattached”) и припојену (“attached”) фракцију, респективно. Укупна концентрација i -тог потомка у ваздуху представља збир слободне и припојене фракције $N_i = N_i^u + N_i^a$. Фактор узмака (p_{i-1}) представља вероватноћу одвајања i -тог потомка од аеросола услед α распада родитељског језгра (при β распадима је $p_{i-1} = 0$). Остали параметри који фигуришу у једначинама Јакобијевог модела су: λ_i – константа радиоактивног распада, λ_v – јачина вентилације, λ_a – јачина припајања аеросолима, λ_d^u – јачина депозиције неприпојених потомака и λ_d^a – јачина депозиције припојених потомака. Вредности ових параметара (све осим константе распада) зависе од амбијенталних услова, димензија просторије, кретања ваздуха, концентрације аеросола итд. У Табели 4.1 су дати типични интервали и најбоље процене ових параметара [Amgarou и др, 2003].

Табела 4.1 Вредности параметара Јакобијевог модела (h^{-1})

Параметар	Опсег	Средња вредност
λ_v	0.2 – 2	0.55
λ_a	5 – 500	50
λ_d^u	5 – 100	20
λ_d^a	0.05 – 1.1	0.2

4.2 Основне величине којима се описују концентрације радона, торона и њихових потомака

Активност радиоактивног извора представља број распада који се догоде у јединици времена:

$$A = \lambda N \quad (4.3)$$

где је N – број атома у извору, а λ – константа радиоактивног распада датог радионуклида. Јединица за активност је $1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1}$.

PAEC (**P**otential **A**lpha **E**nergy **C**oncentration) представља укупну суму потенцијалних алфа енергија свих краткоживећих потомака радона или торона у јединичној запремини ваздуха [Swedjemark, 1983]. Ова величина се изражава формулом:

$$PAEC = \sum_i n_i E_i \quad (4.4)$$

где је n_i концентрација атома i -тог потомка (број његових атома у 1 m^3 ваздуха), а E_i означава потенцијалну алфа енергију једног атома i -тог потомка тј. суму свих алфа енергија емитованих при распаду датог атома до ^{210}Pb или ^{208}Pb [Porstendörfer, 1994].

На основу претходне једначине, за радонове и торонове потомке се може писати респективно:

$$PAEC_{Rn} = n_{^{218}\text{Po}} E_{^{218}\text{Po}} + n_{^{214}\text{Pb}} E_{^{214}\text{Pb}} + n_{^{214}\text{Bi}} E_{^{214}\text{Bi}} \quad (4.5)$$

$$PAEC_{Tn} = n_{^{212}\text{Pb}} E_{^{212}\text{Pb}} + n_{^{212}\text{Bi}} E_{^{212}\text{Bi}} \quad (4.6)$$

У једначинама су изостављени потомци са веома кратким временом полураспада (^{214}Po , ^{216}Po и ^{212}Po). Табела 4.2 приказује вредности одговарајућих потенцијалних алфа енергија потомака радона и торона.

Табела 4.2 Потенцијалне енергије алфа-честица по једном атому (E_i) и по јединичној активности (E_i/λ_i) потомака у ланцу распада радона и торона

Радионуклид	$T_{1/2}$	E_i [MeV]	E_i [10^{-12} J]	E_i/λ_i [$10^{-10} \text{ J Bq}^{-1}$]
^{218}Po	3.1 min	13.69	2.19	5.88
^{214}Pb	26.8 min	7.69	1.23	28.5
^{214}Bi	19.9 min	7.69	1.23	21.2
^{214}Po	164 μs	7.69	1.23	$2.9 \cdot 10^{-6}$
^{216}Po	0.15 s	14.6	2.34	$5.06 \cdot 10^{-3}$
^{212}Pb	10.64 h	7.80	1.25	690.8
^{212}Bi	60.6 min	7.80	1.25	65.6
^{212}Po	0.3 μs	8.78	1.4	$6.1 \cdot 10^{-9}$

Системска јединица за PAEC је $\text{J} \cdot \text{m}^{-3}$, али се чешће употребљава традиционална јединица WL (**W**orking **L**evel), при чему је $1WL = 2.08 \mu\text{J m}^{-3}$, што одговара концентрацији

потенцијалне енергије алфа-зрачења краткоживећих радонових потомака који су у секуларној равнотежи са $3700 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ радона. 1 *WL* представља енергију алфа-зрачења од $1.3\cdot 10^5 \text{ MeV}$ коју потенцијално емитује произвољна смеша радонових потомака у 1 dm^3 ваздуха. Такође, 1 *WL* одговара концентрацији од $275 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ торона који је у равнотежи са својим потомцима.

РАЕС, изражен у *WL*, се множи са 170 h како би се добило **излагање** краткоживећим потомцима, у јединицама *WLM* (Working Level Month), при чему 1 *WLM* одговара излагању у атмосфери са РАЕС-ом од 1 *WL*, током периода од једног месеца (2000 радних сати у току године / 12 месеци $\approx 170 \text{ h}$). Системска јединица за излагање је $\text{J}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}$.

Равнотежна еквивалентна концентрација радона (***EERC*** – Equilibrium Equivalent Radon Concentration) или торона (***EETC*** – Equilibrium Equivalent Thoron Concentration) произвољне неравнотежне смеше краткоживећих потомака је она концентрација радона или торона која, у равнотежи са својим краткоживећим потомцима, има исти РАЕС као и дата неравнотежна смеша. Ове величине имају јединицу $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, а могу се изразити на следећи начин [UNSCEAR, 2000]:

$$EERC = 0.105 \cdot A_{218Po} + 0.515 \cdot A_{214Pb} + 0.380 \cdot A_{214Bi} \quad (4.7)$$

$$EETC = 0.913 \cdot A_{212Pb} + 0.087 \cdot A_{212Bi} \quad (4.8)$$

где су са A_i обележене активносне концентрације ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) одговарајућих потомака радона и торона у ваздуху.

Равнотежни фактор радона (F_{Rn}) или торона (F_{Tn}) представља однос одговарајуће еквивалентне равнотежне концентрације и стварне концентрације радона или торона у ваздуху:

$$F_{Rn} = \frac{EERC}{A_{Rn}} \quad (4.9)$$

$$F_{Tn} = \frac{EETC}{A_{Tn}} \quad (4.10)$$

Однос активносне концентрације i -тог потомка (A_i) и концентрације радона или торона ($A_{Rn, Tn}$) представља степен равнотеже датог потомка [Porstendörfer, 1994]:

$$F_i = \frac{A_i}{A_{Rn,Tn}} \quad (4.11)$$

4.3 Мерење концентрација потомака методом филтрирања ваздуха

Као што је већ напоменуто, штетни утицај радонових и торонових краткоживећих потомака на људско здравље далеко премашује утицај самог радона или торона. Доминантно излагање је унутрашње излагање, при чему инхалација и таложење радиоактивних потомака на осетљивим слојевима дисајних путева има највећи значај са аспекта радиолошког ризика. Апсорпција и транспорт радионуклида путем крви повећава дозе и у другим органима људског организма.

Већ деценијама се за мерење концентрација потомака радона и торона у ваздуху интензивно користе методе засноване на филтрирању ваздуха, при чему се чврсти радионуклиди задржавају на одговарајућим филтерима [Chunxiang и Daling, 1983; EL-Hussein и др, 2001; Gäggeler и др, 1995; Islam и Haque, 1994; Papp и Dezső, 2006; Pogorski и Phillips, 1985; Ruzer и Sextro, 1997; Singh и др, 2006]. Детектовањем зрачења које потомци емитују са филтера за време или након престанка филтрирања и коришћењем познатих система једначина добијају се информације о концентрацији потомака присутних у амбијенталном ваздуху.

Број атома сваког појединачног потомака на филтеру је, током филтрирања, диктиран комбинацијом процеса радиоактивног распада и накупљања услед пропуштања ваздуха. Временска промена се може описати следећим системима диференцијалних једначинама:

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = n_1 v \eta - \lambda_1 N_1(t) \quad (4.12)$$

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = n_2 v \eta + \lambda_1 N_1(t) - \lambda_2 N_2(t) \quad (4.13)$$

$$\frac{dN_3(t)}{dt} = n_3 v \eta + \lambda_2 N_2(t) - \lambda_3 N_3(t) \quad (4.14)$$

$$\frac{dN_4(t)}{dt} = n_4 v \eta - \lambda_4 N_4(t) \quad (4.15)$$

$$\frac{dN_5(t)}{dt} = n_5 v \eta + \lambda_4 N_4(t) - \lambda_5 N_5(t) \quad (4.16)$$

при чему се прве три једначине односе на радонове (^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi), а последње две на торонове потомке (^{212}Pb и ^{212}Bi). У претходним изразима су са N_i ($i = 1,2,3,4,5$) означени бројеви атома ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{212}Pb и ^{212}Bi на филтеру, респективно; n_i су концентрације атома одговарајућих потомака у ваздуху [m^{-3}], а λ_i су њихове константе радиоактивних распада [s^{-1}]. Ефикасност филтера је означена са η , а v представља брзину филтрирања ваздуха, изражену у $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. У једначинама је претпостављено да је ефикасност накопљања на филтеру једнака за све потомке. Решавањем диференцијалних једначина добијају се временски зависне функције промене броја атома потомака на филтеру за време филтрирања, $N_i(t)$, а њихово множење са одговарајућим константама радиоактивног распада даје активности.

Након престанка филтрирања, атоми потомака накопљени на филтеру даље подлежу процесима радиоактивног распада, те се функције опадања њиховог броја добијају решавањем симултаних система једначина:

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = -\lambda_1 N_1(t) \quad (4.17)$$

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = \lambda_1 N_1(t) - \lambda_2 N_2(t) \quad (4.18)$$

$$\frac{dN_3(t)}{dt} = \lambda_2 N_2(t) - \lambda_3 N_3(t) \quad (4.19)$$

$$\frac{dN_4(t)}{dt} = -\lambda_4 N_4(t) \quad (4.20)$$

$$\frac{dN_5(t)}{dt} = \lambda_4 N_4(t) - \lambda_5 N_5(t) \quad (4.21)$$

Претходне једначине се решавају уз коришћење почетних услова $N_i(0) = N_{0i}(T)$, где су N_{0i} бројеви одговарајућих потомака на филтеру у тренутку престанка филтрирања, а добијају се на основу решења система (4.12) – (4.16) за $t = T$, при чему T представља временски интервал трајања филтрирања. На тај начин се активности потомака радона и торона на филтеру након престанка филтрирања доводе у везу са њиховим концентрацијама у филтрираном ваздуху.

Детекција зрачења које настаје распадом краткоживећих потомака се може вршити након престанка филтрирања или се временски преклапати са процесом филтрирања, што знатно побољшава мерну прецизност, али захтева сложенију инструментацију и може довести до додатних грешака [Nazaroff, 1984]. Метод се може заснивати на мерењу

тренутних активности тј. брзине одброја у различитим временским тренуцима или интегралном мерењу броја импулса емитованих током различитих временских интервала, при чему се једначине активности преводе у једначине укупних одброја интеграцијом по времену у одговарајућим границама:

$$R_i = \int_{t_p}^{t_k} \lambda_i N_i(t) dt \quad (4.22)$$

где R_i представља број импулса који се детектују у интервалу $[t_p, t_k]$.

Додатно, мерења се могу заснивати на одређивању суме импулса емитованих од стране различитих потомака, без дискриминације, или на спектрометријским методама код којих долази до раздвајања одброја на основу енергије емитованог зрачења.

С обзиром да су потомци радона и торона алфа, бета и гама емитери, развијено је више метода мерења њихових концентрација у ваздуху, у зависности од врсте зрачења које се детектује са филтера, при чему свака од метода има својих предности и недостатака. Један од основних проблема код детектовања алфа-зрачења са филтера је појава уграђивања радиоактивних аеросола у сам материјал филтера, током процеса филтрирања. То доводи до апсорпције енергије алфа честица и неизбежног ширења пикова алфа спектра, чак и у случају мерења под вакуумским условима и без значајног нагомилавања прашине на филтеру (која такође може отежавати детекцију). Апсорпција у филтеру може битно утицати на тачност мерења, с обзиром да су решења система симултаних једначина на којима се метод заснива веома осетљива на промене броја одговарајућих импулса детектованих са филтера у току процеса мерења. Због веће продорности, апсорпција и таложeње аеросола не представљају значајан проблем при детекцији бета и гама зрачења, али се и ту могу јавити проблеми попут лоше мерне прецизности, мале ефикасности детекције итд.

5. МОНТЕ КАРЛО МЕТОД

Монте Карло метод је нумерички метод налажења апроксимативних решења сложених математичких проблема моделовањем случајних величина [Lux и Koblinger, 1991; Manno, 1999; Dupree и Fraley, 2001; Савовић, 2003]. Примена метода се заснива на симулирању реалних процеса чија су стања одређена законима вероватноће и извођењу великог броја рачунских "експеримената". На тај начин се релативно лако врши анализа проблема и појава чији је аналитички третман или експериментално проучавање изузетно компликовано или потпуно немогуће. При дефинисању случајних величина и симулирању стохастичких процеса користе се алгоритми за генерисање стандардних случајних бројева са униформном расподелом у интервалу $[0, 1]$.

Монте Карло Метод је постао доступан јавности средином 20. века, а са развојем рачунара пронашао је употребу у различитим областима науке и технике у којима доминира стохастичка природа процеса.

5.1 Случајни догађаји и њихове вероватноће

Случајни догађаји су они догађаји чија се реализација при извођењу посматраног експеримента не може поуздано предвидети, већ се могу познавати само могући исходи и њихове вероватноће. Случајни догађаји се деле на елементарне и сложене.

Ако реализација догађаја A утиче на реализацију догађаја B , догађаји A и B су зависни и вероватноћа догађаја B , под условом да је реализован догађај A , назива се условна или релативна вероватноћа. Ова вероватноћа се означава са $P(B|A)$.

Производ догађаја A и B представља догађај који се реализује само уколико се реализују и догађај A и догађај B , а означава се са AB . Вероватноћа производа два догађаја је дата изразом:

$$P(AB) = P(A)P(B|A) = P(B)P(A|B) \quad (5.1)$$

где су $P(A)$ и $P(B)$ вероватноће реализације догађаја A и B , респективно.

Ако су догађаји A и B независни, вероватноћа њиховог производа је једнака производу појединачних вероватноћа догађаја:

$$P(AB) = P(A)P(B) \quad (5.2)$$

Збир догађаја A и B представља догађај који се реализује ако се реализује бар један од догађаја A или B . Збир два догађаја се означава са $A+B$, а његова вероватноћа је дата са:

$$P(A+B) = P(A) + P(B) - P(AB) \quad (5.3)$$

Уколико се догађаји A и B међусобно искључују тј. ако је њихов производ AB немогућ догађај, онда је вероватноћа њиховог збира једнака збиру вероватноћа појединачних догађаја:

$$P(A+B) = P(A) + P(B) \quad (5.4)$$

5.2 Случајне променљиве

Случајном догађају се може придружити случајна променљива ξ која може имати различите вредности које одговарају различитим исходима посматраног догађаја.

Дискретном случајном променљивом се сматра променљива која узима коначан број или пребројиво много вредности из скупа дискретних бројних вредности. Ако се са $x_1, x_2, \dots, x_n, \dots$ означе могуће вредности дискретне случајне променљиве, а са $p_1, p_2, \dots, p_n, \dots$ вероватноће које одговарају овим вредностима, онда се расподела променљиве може записати на следећи начин [Manno, 1999]:

$$\xi = \left\{ \begin{matrix} x_1, x_2, \dots, x_n, \dots \\ p_1, p_2, \dots, p_n, \dots \end{matrix} \right\} \quad (5.5)$$

при чему вероватноће задовољавају услове: $p_i > 0$ и $\sum_i p_i = 1$.

Математичко очекивање дискретне случајне променљиве ξ је дато изразом:

$$E(\xi) = \frac{\sum_i x_i p_i}{\sum_i p_i} = \sum_i x_i p_i \quad (5.6)$$

Варијанса дискретне случајне променљиве ξ се може изразити на следећи начин:

$$D^2(\xi) = E(\xi^2) - (E(\xi))^2 \quad (5.7)$$

Ако су вредности $x_1, x_2, \dots, x_n$ могући исходи дискретне случајне променљиве ξ и ако су вероватноће сваког појединачног исхода једнаке:

$$P(\xi = x_i) = \frac{1}{n}, \quad i = 1, 2, \dots, n \quad (5.8)$$

онда променљива ξ има униформну расподелу на датом скупу вредности $x_1, x_2, \dots, x_n$. У овом случају се математичко очекивање и варијанса променљиве ξ могу изразити следећим формулама:

$$E(\xi) = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (5.9)$$

$$D^2(\xi) = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i^2 - \left(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \right)^2 \quad (5.10)$$

За разлику од дискретних променљивих, непрекидне случајне променљиве могу узети било коју вредност из неког интервала $[a, b]$. Вероватноћа да вредност непрекидне случајне променљиве буде из неког произвољног подинтервала $[c, d]$, при чему је $[c, d] \subset [a, b]$ дата је са:

$$P(c \leq \xi \leq d) = \int_c^d f(x) dx \quad (5.11)$$

где функција $f(x)$ представља густину расподеле вероватноће и задовољава услове: $f(x) > 0$

$$\text{и } \int_a^b f(x) dx = 1.$$

Функција $F(x)$, дата изразом:

$$F(x) = \int_a^x f(x') dx' \quad (5.12)$$

представља функцију кумулативне расподеле [Manno, 1999]. Коришћењем ове функције, вероватноћа да вредност непрекидне случајне променљиве ξ буде из интервала $[c, d]$ може се изразити и на следећи начин:

$$P(c \leq \xi \leq d) = F(d) - F(c) \quad (5.13)$$

Математичко очекивање и варијанса непрекидне случајне променљиве ξ су дати следећим изразима:

$$E(\xi) = \frac{\int_a^b xf(x)dx}{\int_a^b f(x)dx} = \int_a^b xf(x)dx \quad (5.14)$$

$$D^2(\xi) = \int_a^b (x - E(\xi))^2 f(x)dx \quad (5.15)$$

Ако непрекидна случајна променљива ξ има хомогену расподелу у интервалу $[a, b]$, њена густина расподеле вероватноће се може изразити на следећи начин:

$$f(x) = \begin{cases} 0, & x < a \\ \frac{1}{b-a}, & a \leq x \leq b \\ 0, & x > b \end{cases} \quad (5.16)$$

У овом случају се математичко очекивање и варијанса непрекидне случајне променљиве ξ могу добити коришћењем једноставних израза:

$$E(\xi) = \int_a^b \frac{x}{b-a} dx = \frac{a+b}{2} \quad (5.17)$$

$$D^2(\xi) = \int_a^b \frac{x^2}{b-a} dx - \left(\frac{a+b}{2} \right)^2 = \frac{(b-a)^2}{12} \quad (5.18)$$

5.3 Генерисање случајног правца и случајне тачке у запремини сфере

Монте Карло метод налази интензивну примену у нуклеарној физици, где симулирање стохастичких процеса (попут радиоактивних распада, емисија радиоактивних честица, интеракција зрачења са околином итд.) често намеће потребу генерисања случајних тачака и случајних праваца у простору.

Коришћењем сферних координата, елемент запремине се може представити као:

$$dV = r^2 \sin \theta dr d\theta d\varphi \quad (5.19)$$

Ако се захтева да тачка $P(x, y, z)$ има униформну расподелу у сфери запремине V и полупречника R , вероватноћа да се тачка нађе у елементу запремине dV је дата са:

$$\frac{dV}{V} = \frac{r^2 \sin \theta dr d\theta d\varphi}{\int_0^R \int_0^\pi \int_0^{2\pi} r^2 \sin \theta dr d\theta d\varphi} = \frac{3r^2 \sin \theta dr d\theta d\varphi}{4R^3 \pi} \quad (5.20)$$

С обзиром да су случајне променљиве r , θ и φ међусобно независне, функција густине расподеле вероватноће се може представити као производ три функције, па се вредности координата r , θ и φ могу добити на основу следећих израза:

$$\frac{3}{R^3} \int_0^r r^2 dr = u_1 \quad (5.21)$$

$$\frac{1}{2} \int_0^\theta \sin \theta d\theta = u_2 \quad (5.22)$$

$$\frac{1}{2\pi} \int_0^\varphi d\varphi = u_3 \quad (5.23)$$

где су u_1 , u_2 и u_3 случајни бројеви са униформном расподелом у интервалу $[0, 1]$, а константе које се у изразима појављују испред интеграла ($C_r = \frac{3}{R^3}$, $C_\theta = \frac{1}{2}$ и $C_\varphi = \frac{1}{2\pi}$), добијају се из услова нормирања:

$$C_r \int_0^R r^2 dr = 1 \quad (5.24)$$

$$C_\theta \int_0^\pi \sin \theta d\theta = 1 \quad (5.25)$$

$$C_\varphi \int_0^{2\pi} d\varphi = 1 \quad (5.26)$$

Координате случајне тачке се, на основу решења интеграла у једначинама (5.21) – (5.23), генеришу помоћу следећих израза:

$$r = \sqrt[3]{R^3 u_1} \quad (5.27)$$

$$\theta = \arccos(1 - 2u_2) \quad (5.28)$$

$$\varphi = 2\pi u_3 \quad (5.29)$$

Прелазак на Декартове координате се врши трансформацијом:

$$x = r \sin \theta \cos \varphi \quad y = r \sin \theta \sin \varphi \quad z = r \cos \theta \quad (5.30)$$

На сличан начин се врши и генерисање случајних праваца у простору, при чему је одређивање компоненти вектора правца (p_x, p_y, p_z) еквивалентно одређивању координата тачака које су униформно распоређене на површини сфере јединичног полупречника $(r = 1)$:

$$p_x = \sin \theta \cos \varphi \quad p_y = \sin \theta \sin \varphi \quad p_z = \cos \theta \quad (5.31)$$

Генерисање случајних тачака и праваца се често користи при симулирању радиоактивних распада при којима долази до изотропне емисије насталих честица.

5.3.1 Генерисање случајне тачке у површинском слоју запремине сфере, дебљине D

Ако се, уместо хомогене расподеле у читавој запремини сфере, захтева генерисање случајних тачака само у површинској љусци дебљине D (при чему је $D < R$), координата r може имати вредности у интервалу од $R' = R - D$ до R , па се константа нормирања сада добија на следећи начин:

$$C_r \int_{R'}^R r^2 dr = C_r \frac{R^3 - R'^3}{3} = 1 \Rightarrow C_r = \frac{3}{R^3 - R'^3} \quad (5.32)$$

На основу тога, променљива r се у овом случају одређује на следећи начин:

$$\frac{3}{R^3 - R'^3} \int_{R'}^r r^2 dr = \frac{r^3 - R'^3}{R^3 - R'^3} = u_1 \quad (5.33)$$

$$r = \sqrt[3]{u_1(R^3 - R'^3) + R'^3} \quad (5.34)$$

где u_1 представља случајни број са униформном расподелом у интервалу $[0, 1]$. Координате θ и φ се генеришу идентично као и у претходном случају.

II) ИСТРАЖИВАЧКИ ДЕО

6. ТЕОРИЈСКО ИЗРАЧУНАВАЊЕ ЕМАНАЦИОНЕ ФРАКЦИЈЕ РАДОНА

Радиоактивним распадом ^{226}Ra у материјалима зрнасте структуре долази до стварања атома радона ^{222}Rn , који узмаком могу да напусте зрно у коме су настали и дифундују кроз поре материјала у спољашњу средину. Еманациона фракција тј. проценат насталих атома радона, који узмаком напуштају зрна и заустављају се у порама, биће разматран коришћењем следећих олакшавајућих претпоставки:

- зрна материјала су идеалне и идентичне сфере полупречника R ;
- атоми радона се након узмака крећу праволинијски;
- домети атома радона у разматраним срединама (материјалу зрна или материјалу који испуњава поре између зрна, зависно од правца узмака) су једнаки пројектованим дometима добијеним коришћењем SRIM-2008 (Ziegler и др., 2008) компјутерског кода за радон са одговарајућом почетном енергијом.

Еманациона фракција радона зависи од вероватноће да атоми радона, услед узмака, напусте зрна у којима су настали и доспеју у поре између зрна.

6.1 Вероватноћа изласка из зрна

6.1.1 Аналитички приступ

Вероватноћа да атоми радона, створени у зрну, узмаком изађу у простор између зрна, различита је од нуле само уколико је место распада ^{226}Ra лоцирано у површинском слоју зрна дебљине једнаке или мање од домета радона, D .

Слика 6.1 приказује сферу G која представља зрно полупречника R . Сфера S_D , са полупречником D једнаким домету узмакнутог атома радона у материјалу зрна, има центар у тачки стварања радона, A . Због једноставности, изабрано је да се тачка A налази на x -оси, што не умањује општост разматрања.

Дакле, разматрањем само оних атома који настају у површинском слоју дебљине D , средња вероватноћа изласка из зрна се може одредити на следећи начин:

$$\overline{w_E} = \frac{\int_{R-D}^R w(r) r^2 dr}{\int_{R-D}^R r^2 dr} \quad (6.5)$$

Решавање интеграла даје израз за средњу вероватноћу напуштања зрна, у функцији полупречника зрна, R , и домета узмакнутих атома, D :

$$\overline{w_E}(R, D) = \frac{1}{2} - \frac{3(4R^2 + 3D^2 - 8RD)}{16(3R^2 - 3RD + D^2)} \quad (6.6)$$

За велике полупречнике, R , вредност претходне функције тежи 0.25.

6.1.2 Монте Карло приступ

Вредности функције (6.6) су упоређене са резултатима добијеним применом Монте Карло симулација. У ту сврху је направљен програм коришћењем Fortran 90 програмског језика. На основу разматрања приказаног у Глави 5, тачке стварања радона (у сферном координатном систему) су биране на следећи начин:

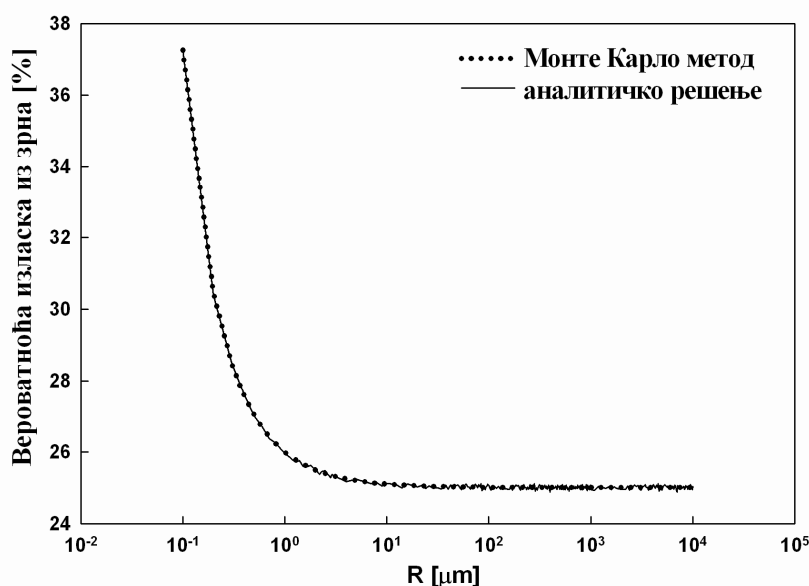
$$\begin{aligned} r_T &= \sqrt[3]{u_1(R^3 - R'^3) + R'^3} \\ \theta_T &= \arccos(1 - 2u_2) \\ \varphi_T &= 2\pi u_3 \end{aligned} \quad (6.7)$$

где је $R' = R - D$, док u_1 , u_2 и u_3 представљају случајне бројеве са униформном расподелом у интервалу $[0, 1]$.

Правца узмака радона је такође биран на случајан начин. Тако је обављена тзв. директна симулација, јер је у реалности процес распада атома радијума, као и правац емисије алфа-честице и језгра радона, потпуно случајан. Растојање од тачке стварања радона до површине зрна (дуж изабраног правца) је рачунато и упоређивано са дометом радона у

материјалу зрна. На основу тога, одређено је да ли створени атом, са изабраним правцем узмака, излази из зрна или остаје у њему.

Слика 6.2 показује да је вероватноћа изласка из зрна, добијена на основу једначине (6.6), у добром слагању са Монте Карло прорачунима. Број симулација је 10^6 (што је аналогно 10^6 створених радонових атома). Резултати су приказани за зрно SiO_2 , претпостављајући униформну расподелу атома ^{226}Ra у површинском слоју зрна, до дубине једнаке домету радонових атома у кварцу ($D \approx 38 \text{ nm}$). Множењем са $(R^3 - R^3)/R^3$, ови резултати се такође могу скалирати на целу запремину зрна.



Слика 6.2 Зависност вероватноће изласка радона из зрна SiO_2 од полупречника зрна. Полазне тачке узмакнутих атома радона су узорковане до дубине D

6.2 Скуп зрна разматран Монте Карло методом

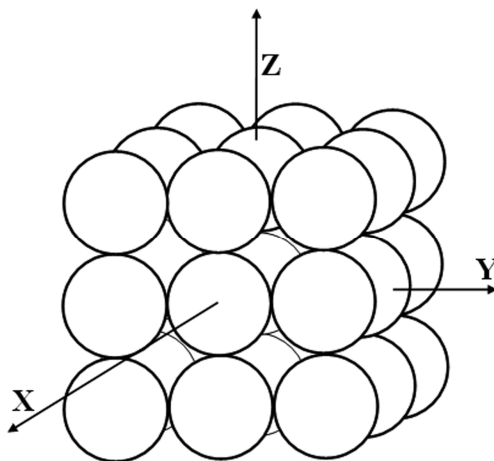
6.2.1 Проста кубна структура (SCS - Simple Cubic Structure)

Претходно разматрана вероватноћа изласка радонових атома из зрна у коме су настали не одређује у потпуности еманациону фракцију. Неки од атома који напусте зрно неће бити заустављени у порама, већ ће се уградити у неко од суседних зрна.

У циљу процене фракције радонових атома који се заустављају у простору између зрна, претпостављено је да је зрно у коме настаје радон окружено бесконачним бројем зрна, распоређеним на основу два различита модела: модела прости кубне структуре и модела заснованог на површински центрираној кубној структури. Оба распореда су реално могућа, мада је други вероватнији с обзиром да обезбеђује већу густину паковања зрна. Под

претпоставком да су сва зрна идентична, фракција еманације радона из једног таквог зрна одређује еманациону фракцију целог система.

Први модел се састоји из 27 сферних зрна, пакованих у просту кубну структуру (Слика 6.3).



Слика 6.3. Проста кубна структура (SCS)

Атоми радона настају у централном зрну, окруженом са 26 идентичних сфера. Почетак координатног система је постављен у центар централног зрна, тако да се i -та сфера ($i = 1, 2, \dots, 27$) може дефинисати једначином:

$$(x - C_{ix})^2 + (y - C_{iy})^2 + (z - C_{iz})^2 = R^2 \quad (6.8)$$

где C_{ij} ($j = x, y, z$) одређује центар i -те сфере, узимајући вредности $-2R$, 0 или $2R$. Термин "суседне" ће бити коришћен за сфере које окружују централну сферу модела. Оне такође могу емитовати атоме радона, али вероватноћа да радон узмаком изађе из зрна у коме је настао и остане у порама између зрна, у општем случају, не зависи од радиоактивности суседних зрна, већ само од њихове величине и положаја тј. може се претпоставити да се атоми радона стварају само у централном зрну.

Следећи кораци су коришћени при одређивању еманационе фракције:

а) Одређена је излазна енергија са којом атом радона напушта централно зрно (E_i). Почетна енергија узмака свих атома је увек иста ($E_0 = 86 \text{ keV}$), али растојање од тачке стварања до тачке изласка из зрна је различито (зависно од правца узмака). Домет радона у материјалу зрна, као и у материјалу који испуњава простор између зрна добија се коришћењем SRIM-2008 компјутерског кода. Добијени подаци су фитовани у циљу добијања функције зависности пројектованог домета од енергије. Параметри фитовања су одређивани посебно за енергије испод и изнад 1 keV како би се добила боља тачност резултата.

б) Пресеци путање узмака радона и i -те суседне сфере су одређивани решавањем квадратне једначине по k :

$$ak^2 + bk + c = 0 \quad (6.9)$$

где је:

$$\begin{aligned} a &= p_x^2 + p_y^2 + p_z^2 \\ b &= 2[p_x(x_1 - C_{ix}) + p_y(y_1 - C_{iy}) + p_z(z_1 - C_{iz})] \\ c &= (x_1 - C_{ix})^2 + (y_1 - C_{iy})^2 + (z_1 - C_{iz})^2 - R^2 \end{aligned} \quad (6.10)$$

Овде (p_x, p_y, p_z) представља вектор правца радоновог узмака, а (x_1, y_1, z_1) је тачка у којој радон напушта централно зрно. Постојање реалних решења претходне квадратне једначине указује на то да правац радоновог узмака пресеца разматрану i -ту сферу. Сфере се проверавају једна по једна, почев од оних које су у директном контакту са централним зрном, преко даљих, па све до најдаљих, следећим редом:

$$\begin{aligned} 1. \quad |C_{ix}| + |C_{iy}| + |C_{iz}| &= 2R \\ 2. \quad |C_{ix}| + |C_{iy}| + |C_{iz}| &= 4R \\ 3. \quad |C_{ix}| + |C_{iy}| + |C_{iz}| &= 6R \end{aligned} \quad (6.11)$$

Ово се ради како би се избегло погрешно бројање због могућности разматрања пресека са даљим сферама без информације о претходном пресецању са неком од ближих. Решавањем квадратне једначине добијају се два решења за k . Једно од њих одређује тачку уласка у суседно зрно (x_{S1}, y_{S1}, z_{S1}) , док друга одређује тачку потенцијалног изласка из истог зрна (x_{S2}, y_{S2}, z_{S2}) .

в) Растојање од тачке изласка из централног зрна до уласка у суседно зрно се упоређује са дометом радона (са енергијом E_i) у простору између зрна и на основу тога се одређује да ли се радон зауставља у пори или улеће у суседно зрно.

г) За атоме који улазе у неко од суседних зрна, рачуна се енергија уласка (E_{S1}) и домет у материјалу суседног зрна који одговара тој енергији (D_S). Домет се затим упоређује са растојањем L :

$$L = \sqrt{(x_{s1} - x_{s2})^2 + (y_{s1} - y_{s2})^2 + (z_{s1} - z_{s2})^2} \quad (6.12)$$

Однос $D_s \leq L$ указује на "апсорпцију" радоновог атома у суседном зрну. Након тога, симулација се завршава и симулира се ново стварање атома радона.

д) Ако је $D_s > L$, радон има могућност да изађе и из суседног зрна, па се рачуна нова излазна енергија (E_{s2}). Та енергија се додељује радоновом атому који се "враћа" на површину централног зрна трансформацијом координата:

$$\begin{aligned} x_1 &= x_{s2} - C_{xi} \\ y_1 &= y_{s2} - C_{yi} \\ z_1 &= z_{s2} - C_{zi} \end{aligned} \quad (6.13)$$

Затим се програм враћа на корак б) и понављају се сви наредни кораци. Вероватноћа оваквог исхода је изузетно мала, али се може ипак узети у обзир у случају разматрања зрна веома малог полупречника.

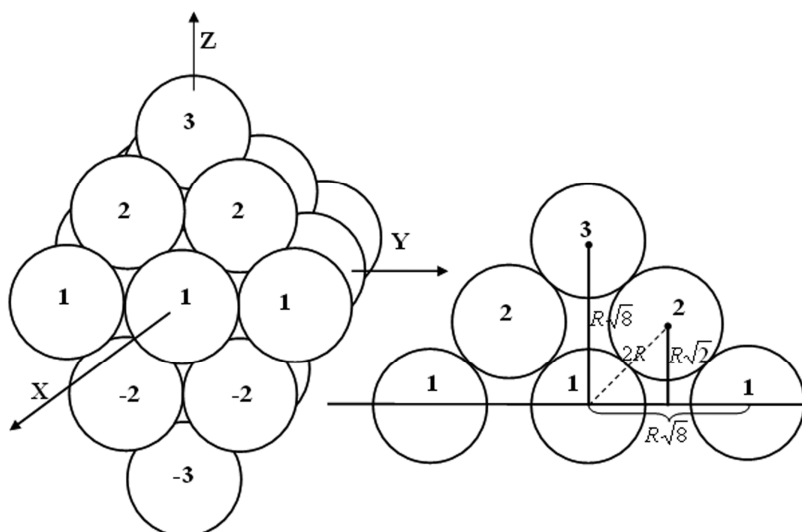
ђ) Уколико се не пронађе пресек са било којом од 26 суседних сфера, испитују се пресеци са равнима $x = \pm 3R$, $y = \pm 3R$ и $z = \pm 3R$.

6.2.2 Површински центрирана кубна структура (FCCS –Face Centered Cubic Structure)

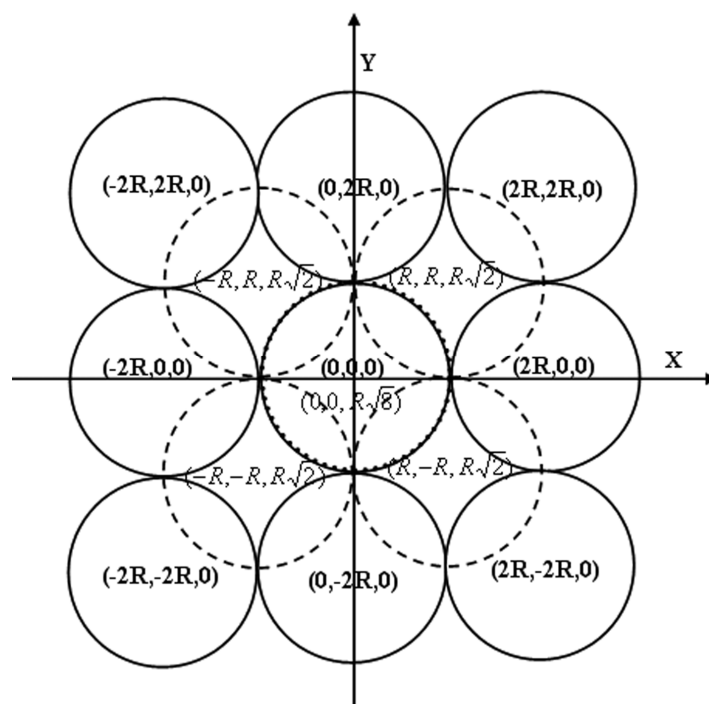
У поређењу са претходним, овај модел обезбеђује већу густину паковања сфера. Централна сфера је овде окружена са 18 суседних сфера, као што је приказано на левој страни Сlike 6.4.

Сфере су распоређене у пет слојева (означених бројевима), тако да свака сфера једног слоја лежи на "шупљини" претходног слоја. Координатни почетак је поново постављен у центар централне сфере. Десна страна Сlike 6.4 представља пресек модела и равни $x = y$. Очигледно је да центри сфера у слојевима 2 и -2 леже у равни $z = R\sqrt{2}$ и $z = -R\sqrt{2}$, респективно, док сфере 3 и -3 имају центре у тачкама $(0,0,\pm R\sqrt{8})$.

Пројекције сфера (слојева 1-3) на раван $z = 0$ представљене су на Слици 6.5. Координате центара сфера су такође приказане.



Слика 6.4 Модел заснован на површински центрираној кубној структури (FCCS)



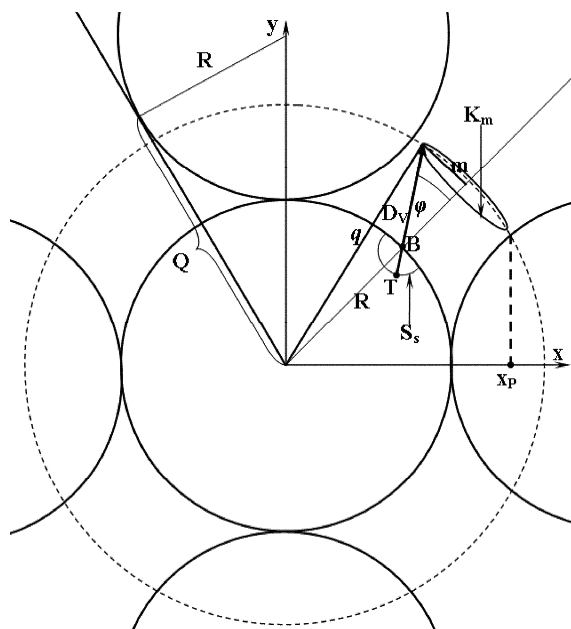
Слика 6.5 FCCS модел, пројекција "позитивних" слојева зрна на равни $z = 0$

Алгоритам одређивања еманационе фракције је сличан као и код претходног модела. Претпостављено је да се радон ствара у централном зрну $(0,0,0)$. Суседна зрна су распоређена на основу структуре илустроване на Сликама 6.4 и 6.5. У случајевима када радонова путања не пресеца ни једну од 18 суседних сфера, разматрају се пресеци са равнима $x = \pm 2R$, $y = \pm 2R$ и $z = \pm R(\sqrt{8} - 1)$.

6.3 Аналитичко разматрање скупа зрна

Налажење општег аналитичког решења за израчунавање еманационе фракције је прилично тешко због компликованих структура претходно описаних модела. Ипак, могуће је развити аналитички метод процене фактора еманације у случају зрна релативно великих полупречника.

Слика 6.6 приказује произвољну тачку В на површини зрна. Посматрајмо атом радона који напушта зрно у тачки В, са енергијом E_V и одговарајућим дометом D_V у околном медијуму. Атом је створен у тачки Т, унутар зрна, на површини мале полусфере S_s (са полупречником s једнаким путу кога атом пређе у зрну). На Слици 6.6 је такође приказан и угао φ између правца путање радона и нормале на површину зрна у тачки В. Нека је q растојање од центра зрна до тачке у којој се радон зауставља.



Слика 6.6 Аналитичко разматрање еманационе фракције: честица створена у тачки Т напушта централно зрно у тачки В и има домет D_V у околној средини

У циљу процене еманационе фракције радона, потребно је зрно у коме настаје радон окружити другим зрнима. За веће вредности полупречника зрна, довољно је разматрати само она зрна која су у директном контакту са централним зрном. Вероватноћа да ће атом радона који напушта зрно под углом φ и са дометом D_V бити заустављен у пори између зрна може се проценити на следећи начин:

$$w(q) = \frac{4\pi q^2 - N \cdot 2\pi q(q - x_p)}{4\pi q^2} \quad (6.14)$$

где је $4\pi q^2$ површина сфере $x^2 + y^2 + z^2 = q^2$, док $2\pi q(q - x_p)$ представља део те површине који одсеца суседна сфера. N је број зрна у директном контакту са централним зрном, а x_p је одређено пресеком сфере $x^2 + y^2 + z^2 = q^2$ и сфере $(x - 2R)^2 + y^2 + z^2 = R^2$ која представља суседно зрно:

$$x_p = \frac{3R^2 + q^2}{4R} \quad (6.15)$$

Заменом x_p у једначини (6.12) добија се следећи израз:

$$w(q) = \frac{N}{8} \left(\frac{3R}{q} + \frac{q}{R} \right) - \frac{(N-2)}{2} \quad (6.16)$$

На основу Сlike 6.6, растојање q се може изразити коришћењем косинусне теореме, па вероватноћа дефинисана једначином (6.14) постаје функција угла φ :

$$w(\varphi, D_V) = \frac{N}{8} \left(\frac{3R}{\sqrt{R^2 + D_V^2 + 2RD_V \cos(\varphi)}} + \frac{\sqrt{R^2 + D_V^2 + 2RD_V \cos(\varphi)}}{R} \right) - \frac{(N-2)}{2} \quad (6.17)$$

Једначину (6.15) треба усредњити по углу φ од 0 до $\pi/2$ у циљу добијања средње вероватноће еманације за атоме са дометом D_V у околном медијуму. Међутим, угао φ нема униформну расподелу у интервалу $[0, \pi/2]$. Функција расподеле угла φ зависи од обима кружнице K_m , полупречника m (Слика 6.6):

$$O_{K_m}(\varphi) = 2\pi m(\varphi) = 2\pi D_V \sin \varphi \quad (6.18)$$

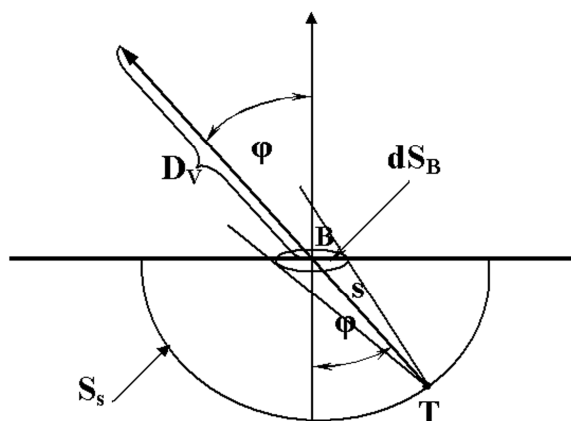
Са друге стране, ако се уместо тачке В разматра инфинитезимално мала површина dS_B која окружује ту тачку (Слика 6.7), вероватноћа да радон створен у тачки Т прође кроз површину dS_B ће зависити од просторног угла под којим се из тачке Т види dS_B . Ова вероватноћа се може изразити односом:

$$\frac{dS_B \cos(\varphi)}{4s^2 \pi} \quad (6.19)$$

На основу израза (6.18) и (6.19), расподела угла φ се може добити нормирањем функције $\sin(\varphi) \cdot \cos(\varphi)$. Ово је упоређено са резултатима које даје Монте Карло метод. Угао између правца кретања (дефинисаног вектором (p_x, p_y, p_z)) и нормале на површину зрна је одређен за сваки атом радона који напусти централно зрно. На основу скаларног производа ова два вектора, угао φ је одеђен на следећи начин:

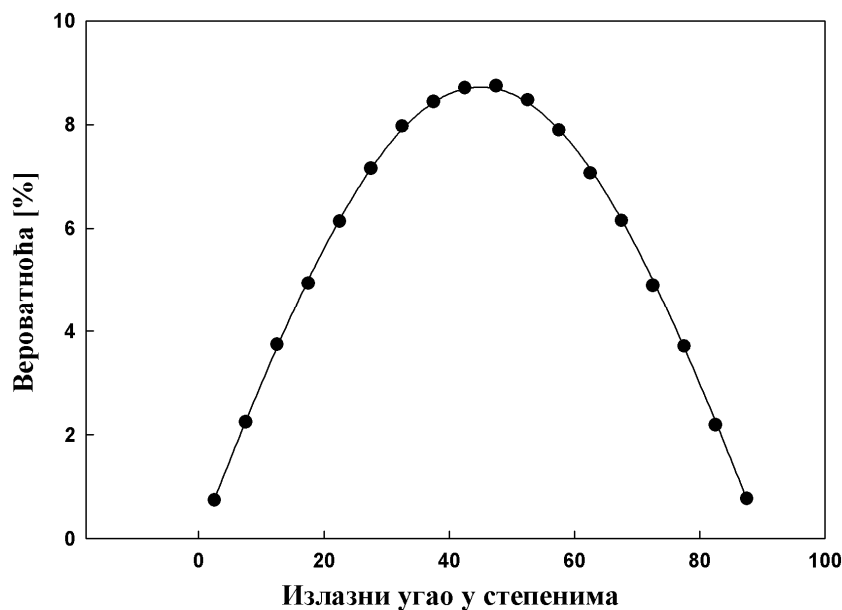
$$\varphi = \arccos\left(\frac{p_x x_1 + p_y y_1 + p_z z_1}{R}\right) \quad (6.20)$$

где (x_1, y_1, z_1) представља тачку у којој радон напушта централно зрно.



Слика 6.7 Вероватноћа да радон, створен у тачки T , при узмаку прође кроз површину dS_B зависи од просторног угла под којим се из тачке T види површина dS_B

Слика 6.8 приказује вероватноћу расподеле угла φ у интервалу $[0, \pi/2]$, добијену коришћењем Монте Карло симулација. Такође је приказано и фитовање криве функцијом $y = a \sin(x) \cos(x)$.



Слика 6.8 Расподела излазног угла: ● Монте Карло резултати; — фитовање функцијом $y = a \sin(x)\cos(x)$

На основу претходног закључка, средња вероватноћа еманације, за честице са дометом D_V , може се добити из следећег израза:

$$\bar{w}(D_V) = \frac{\int_0^{\pi/2} w(\varphi, D_V) \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi}{\int_0^{\pi/2} \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi} \quad (6.21)$$

Параметар нормирања “ a ” из функције фитовања се губи у једначини (6.21). Решавање интеграла у једначини (6.21) даје следеће:

$$\bar{w}(D_V) = \frac{N}{8RD_V^2} \left[\left(1 - \frac{t_2^2}{3R^2} \right) (t_1^3 - t_2^3) - 3t_2^2(t_1 - t_2) + \frac{t_1^5 - t_2^5}{5R^2} \right] - \frac{N-2}{2} \quad (6.22)$$

где је $t_1 = R + D_V$ и $t_2 = \sqrt{R^2 + D_V^2}$.

Вероватноћу изражену претходном једначином треба још усредњити по свим вредностима домета D_V , од 0 до максималног домета D_{Vmax} у околном медијуму:

$$\overline{\overline{w}} = \frac{\int_0^{D_{V \max}} w(D_V) dD_V}{D_{V \max}} \quad (6.23)$$

У циљу процене укупне еманационе фракције, интеграл у једначини (6.23) је решен нумерички, а затим је вероватноћа $\overline{\overline{w}}$ помножена са вероватноћом да радон напусти централно зрно $\overline{w}_E$, која је одређена изразом (6.6).

Претходно представљен метод се може примењивати само уколико је максимална могућа вредност растојања q мања или једнака растојању од координатног почетка до тачке у којој тангента повучена из центра додирује суседну сферу (Слика 6.6):

$$q_{\max} \leq Q = R\sqrt{3} \quad (6.24)$$

Максимално растојање q је одређено максималним могућим дометом у околном медијуму који одговара атомима који су створени тачно на површини зрна и чији је правац узмака нормалан на површину ($\varphi = 0$):

$$q_{\max} = D_{V \max} + R \quad (6.25)$$

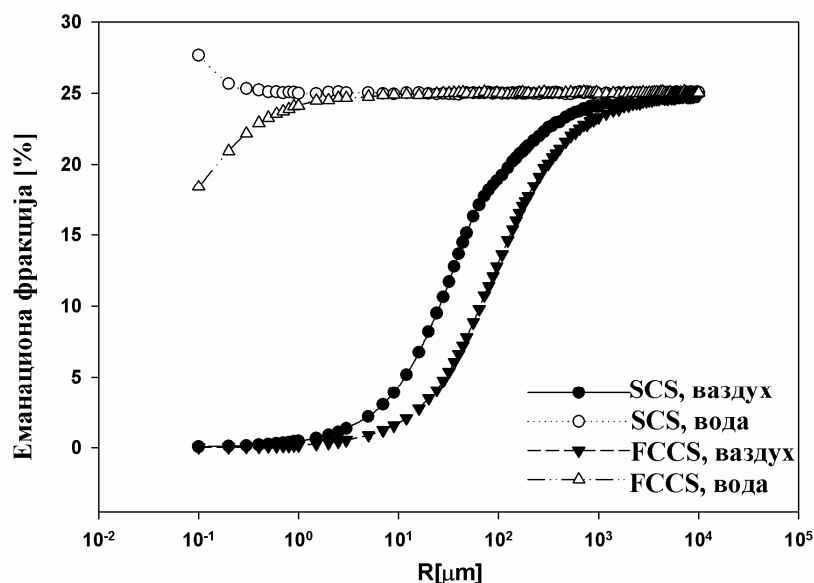
Ако се ово замени у једначини (6.24), добија се услов:

$$R \geq \frac{D_{V \max}}{\sqrt{3} - 1} \quad (6.26)$$

На основу података добијених помоћу SRIM-2008 програма, домет радона (са почетном енергијом од 86 keV) у ваздуху износи $D_{V \max} \approx 70 \mu m$. Под претпоставком да ваздух испуњава простор између зрна, претходни услов намеће ограничење $R_{\min} \approx 0.1 mm$. У случају мањих зрна, вероватноћа еманације се не може дефинисати само једначином (6.14). С обзиром да је домет радона у води мањи од $0.1 \mu m$, ово ограничење није толико строго када се као околни медијум разматра вода.

6.4 Резултати и дискусија

Слика 6.9 приказује резултате добијене Монте Карло методом за описане моделе паковања зрна у материјалу. Представљени алгоритам је примењен на зрна SiO_2 , окружена ваздухом или водом. Претпостављено је да се атоми радона стварају само у површинском слоју зрна, до дубине $D \approx 38 \text{ nm}$ (што је једнако пројектованом домету узмакнутих радонових атома у SiO_2). Број симулација је 10^6 .

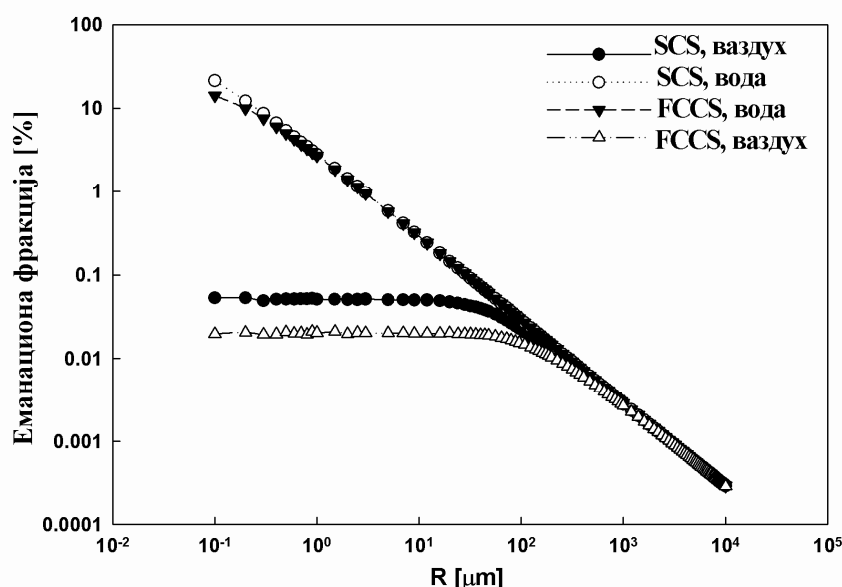


Слика 6.9 Резултати добијени Монте Карло методом за модел просте кубне структуре (SCS) и модел површински центриране структуре (FCCS). Разматрана су зрна окружена ваздухом и водом. Стварање радона се симулира само у површинском слоју зрна дебљине D

Повећањем полупречника зрна, величина пора између зрна такође расте, повећавајући вероватноћу еманације. Модел просте кубне структуре даје веће резултате што је и очекивано с обзиром да модел заснован на површински центрираној кубној структури обезбеђује већу густину паковања зрна, па тиме повећава вероватноћу да се атоми радона који напусте централно зрно уграде у неко од суседних зрна.

Вода у простору између зрна значајно повећава еманациону фракцију код оба модела. Разлог за то је чињеница да је домет радона у води знатно мањи у поређењу са дометом у ваздуху (са истом почетном енергијом). У случају воде као околног медијума, већина радонових атома губи сву своју енергију и зауставља се у порама пре него што доспе до неког од суседних зрна. Разлика између резултата добијених за два поменута модела, у области малих полупречника, изазвана је разликама у сруктури ова два модела тј. различитим распоредом зрна и величинама пора.

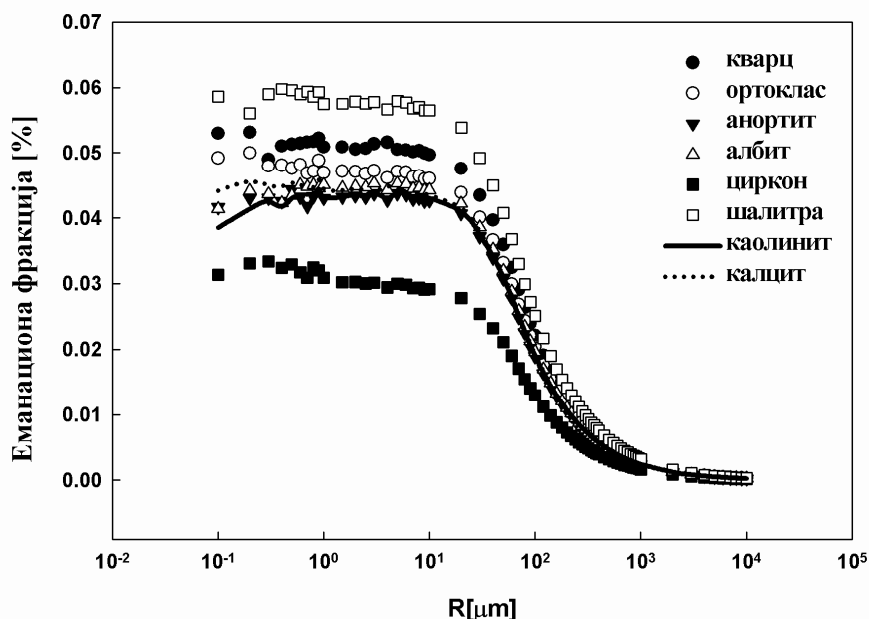
За велике вредности полупречника зрна, поре између зрна су веома велике у поређењу са диметром радона у ваздуху и води, тако да је вероватноћа да радон доспе до неког од суседних зрна изузетно мала. У том случају, готово сваки атом радона, који узмаком успе да напусти зрно у коме је настао, бива заустављен у порама између зрна, без обзира на то да ли су оне испуњене ваздухом или водом.



Слика 6.10 Еманациона фракција као функција полупречника зрна. Атоми ^{226}Ra су хомогено распоређени по целој запремини зрна

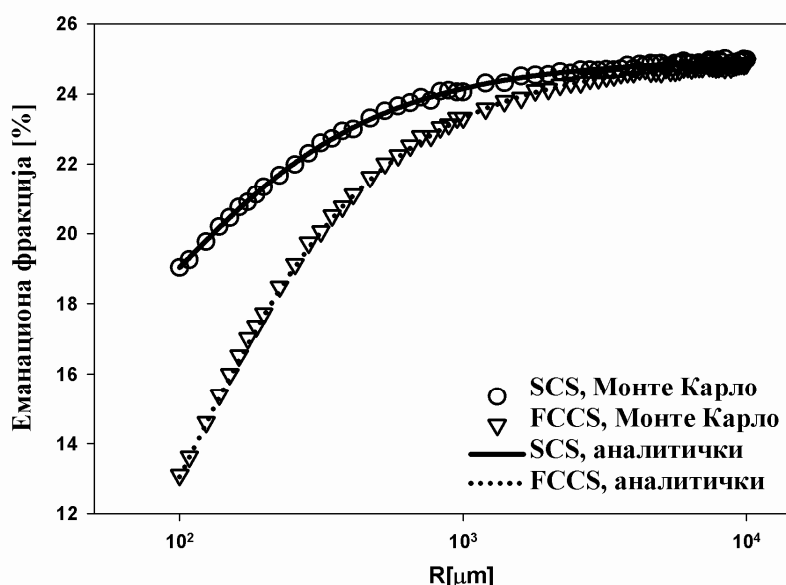
Слика 6.10 приказује исте резултате скалиране на запремину целог зрна, претпостављајући равномерну расподелу атома ^{226}Ra унутар зрна. У овом случају, вероватноћа еманације опада са порастом полупречника зрна због драстичног смањења вероватноће изласка радона из централног зрна. Разлика између функција приказаних на Сликама 6.9 и 6.10 указује на јаку зависност еманационе фракције радона од расподеле ^{226}Ra унутар зрна материјала.

Исти алгоритам израчунавања еманационе фракције може се такође применити и на друге материјале, коришћењем одговарајућих функција зависности пројектованог домета радона од енергије. Слика 6.11 приказује резултате добијене за неколико једињења присутних у природи: кварц, каолинит, калцит, три члана фелдспата (ортоклас, анортит и албит), циркон и шалитру. За добијање приказаних резултата коришћен је модел заснован на простој кубној структури.



Слика 6.11 Еманационе фракције добијене за различите минерале коришћењем Монте Карло методе и SCS модела. Разматрана је хомогена расподела атома ^{226}Ra по запремини зрна

Резултати добијени коришћењем Монте Карло симулација су такође потврђени аналитичком методом. Слика 6.12 показује добро слагање ове две методе за зрна SiO_2 окружена ваздухом. Број зрна у директном контакту са централним зрном је $N = 6$ у SCS моделу и $N = 12$ у FCCS моделу.



Слика 6.12 Поређење резултата добијених Монте Карло методом и аналитичким приступом за зрна SiO_2 и $R > 0.1 \text{ mm}$. ^{226}Ra је распоређен само у површинском слоју зрна, дебљине D

6.5 Поређење резултата

Понашање функције зависности еманационе фракције од полупречника зрна SiO_2 (Слика 6.9) је у релативно добром слагању са резултатима које су дали Sakoda и сарадници [Sakoda и др, 2010a] за случај ваздуха у порама између зрна, мада је код ових аутора добијен нешто бржи пораст еманационе фракције са порастом полупречника. Поменути аутори су такође одређивали вероватноћу еманације радона у зрнима SiO_2 , коришћењем Монте Карло методе. У случају воде у порама између зрна постоји значајније неслагање у области веома малих полупречника ($R < 1 \mu\text{m}$), док за веће полупречнике обе функције јако брзо достижу вредност од приближно 25%. Узрок неслагања може бити структура симулираног модела, која у поменутом раду није детаљно описана.

Вредности еманационих фракција добијене за случај хомогене расподеле атома ^{226}Ra по целој запремини зрна су генерално веома ниске у поређењу са експерименталним резултатима који се могу наћи у литератури (Howard, 1993; Hassan, 2014; Kalkwarf и др., 1985; Righi и Bruzzi, 2006; Sakoda и др, 2010). Један од могућих узрока овог неслагања је нехомогена расподела ^{226}Ra у зрнима природних материјала тј. већа концентрација овог радионуклида у површинским слојевима зрна. Ова претпоставка налази оправданост и у ранијим експерименталним радовима и запажањима других аутора [Krishnaswami и Seidemann, 1988; Megumi и Mamuro, 1974]. Објашњење за добијање експерименталних резултата који драстично превазилазе теоријска очекивања се може тражити и у претпоставци коју су изнели Rama и Moore (1984) о постојању мреже нанопора унутар самих зрна које могу значајно повећати слободну површину зрна, а самим тим и вероватноћу еманације засноване на узмаку радона. Осим тога, потребно је узети у обзир и друге процесе који утичу на еманацију, као што је дифузија у материјалу зрна. Fleischer (1980, 1982, 1988) је такође указао и на појаву додатне еманације атома ^{222}Rn који, услед узмака, уђу у неко од суседних зрна и на месту уласка стварају радијациона оштећења, која касније, под дејством влаге, могу олакшати накнадно ослобађање радона.

7. ЕКСПЕРИМЕНТАЛНО ОДРЕЂИВАЊЕ ЈАЧИНЕ ЕКСХАЛАЦИЈЕ РАДОНА ИЗ ГРАЂЕВИНСКИХ МАТЕРИЈАЛА

7.1 Теоријско разматрање

Атоми радона (^{222}Rn), који настају у неком материјалу радиоактивним распадом ^{226}Ra , имају одређену вероватноћу да напусте материјал и доспеју у спољашњу средину. Количина радона коју материјал "емитује" са своје површине у околни простор описује се јачином ексхалације, а зависи од садржаја ^{226}Ra , као и од структуре и карактеристика самог материјала.

Када се узорак материјала који садржи ^{226}Ra постави у затворену комору, одређена количина радона константно ексхалира са површине узорка и акумулира се у запремини коморе. Промена концентрације радонових атома у комори током времена се може описати следећом једначином:

$$\frac{dN(t)}{dt} = \frac{E_n A + M}{V} - (N(t) - N_{\text{ext}})\lambda_L - N(t)\lambda \quad (7.1)$$

где су: $N(t)$ – број радонових атома у јединици запремине ваздуха у комори; N_{ext} – концентрација радонових атома изван коморе; E_n – број радонових атома који напушта јединичну површину (или јединичну масу) узорка у јединици времена; A – површина (или маса) узорка; V – слободна запремина коморе (укупна запремина коморе умањена за запремину узорка); M – допринос самог система изазван евентуалном контаминацијом материјала у конструкцији уређаја који се користи за мерење, као и материјала саме коморе; λ – константа радиоактивног распада радона ^{222}Rn ; λ_L – брзина цурења.

Претходна једначина не узима у обзир појаву повратне дифузије (*back-diffusion*) с обзиром да се она може занемарити у случајевима када запремина узорка заузима мање од 10% запремине коморе и када је концентрација радона у комори мања од концентрације у порам материјала.

Решење једначине (7.1) је:

$$N(t) = \frac{E_n A + M + N_{ext} \lambda_L V}{(\lambda + \lambda_L) V} (1 - e^{-(\lambda + \lambda_L)t}) + N_0 e^{-(\lambda + \lambda_L)t} \quad (7.2)$$

где N_0 представља почетну концентрацију атома ^{222}Rn у комори. Множењем претходне једначине са константом радиоактивног распада, λ , добија се следећи израз:

$$C(t) = \frac{EA + M' + C_{ext} \lambda_L V}{(\lambda + \lambda_L) V} (1 - e^{-(\lambda + \lambda_L)t}) + C_0 e^{-(\lambda + \lambda_L)t} \quad (7.3)$$

Ова једначина описује временску промену активносне концентрације радона, C [Bq m^{-3}], у запремини коморе, где $E = \lambda E_n$ представља јачину ексхалације радона, изражену у $\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$ (или $\text{Bq kg}^{-2} \text{s}^{-1}$). C_0 је почетна активносна концентрација радона у комори, а $M' = \lambda M$.

Континуираним мерењем концентрације радона у затвореној комори добијају се експериментални подаци којима се може фитовати претходна функција у циљу одређивања јачине ексхалације радона, као једног од параметара фитовања.

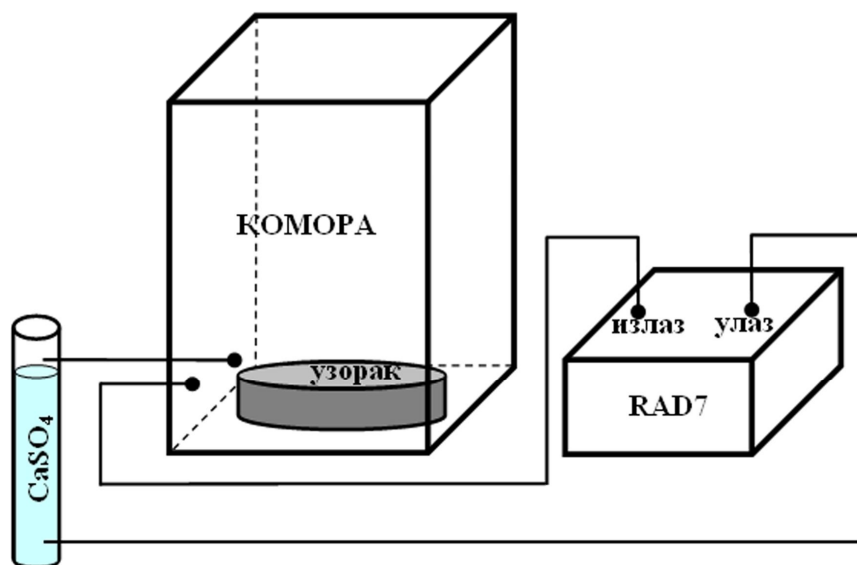
7.2 Мерење јачине ексхалације

7.2.1 Комора без узорака

Јачине ексхалације радона из различитих узорака су одређиване постављањем узорака у комору која је, у виду затворене петље, преко два вентила повезана са улазом и излазом уређаја RAD7 (*Durridge Company*) који омогућава активно мерење концентрације радона. Детаљнији опис уређаја је дат у Глави 2.

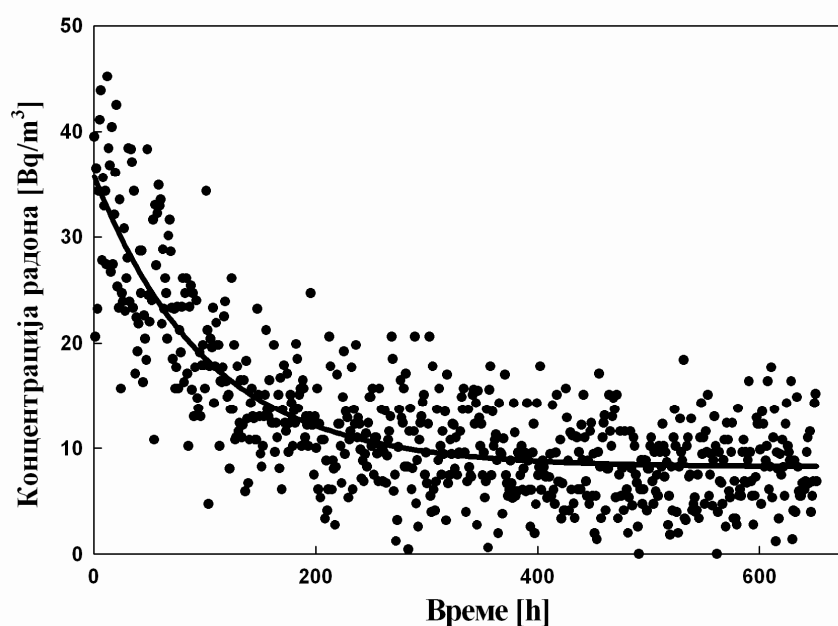
Дијаграм експерименталне поставке је приказан на Слици 7.1. Комора је направљена од плексигласа и има врата која се херметички затварају након постављања узорка. Запремина коморе износи приближно 30 dm^3 .

У циљу правилног одређивања јачине ексхалације из различитих узорака, најпре су испитане карактеристике самог експерименталног система. То је урађено разматрањем случаја када у комори нема узорака, већ је запремина коморе испуњена ваздухом са одређеном почетном концентрацијом радона. Радон је остављен да се распада током месец дана. За то време је RAD7 континуирано пратио опадање активносне концентрације у комори. Мерење је вршено у циклусима од једног часа, при чему је концентрација добијена на крају сваког циклуса приписивана временском тренутку на средини циклуса.



Слика 7.1 Шема експерименталне поставке

Слика 7.2 приказује фитовање експерименталних података једначином (7.3), узимајући $E = 0$. Мерењем концентрације радона изван коморе, C_{ext} , добијена је средња вредност од 15 Bq m^{-3} . Вредности параметара $M' = (1.33 \pm 0.09) \cdot 10^{-3} \text{ Bq h}^{-1}$ и $\lambda_L = (0.0022 \pm 0.0006) \text{ h}^{-1}$ су добијене фитовањем и оне су коришћене за даљу процену брзина ексхалације из различитих узорак.

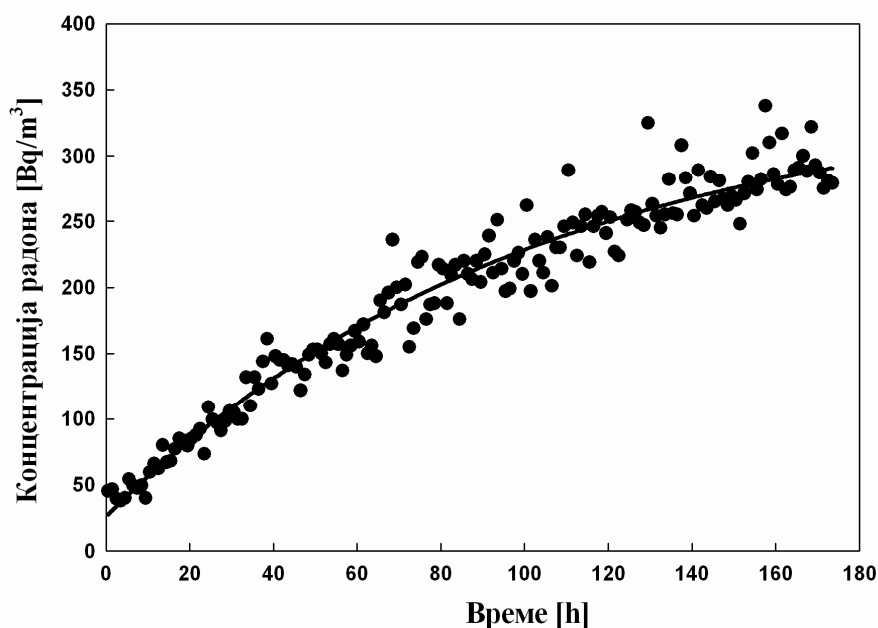


Слика 7.2 Временска промена концентрације радона у експерименталној комори без узорка. Непрекидна линија представља фитовање експерименталних података

7.2.2 Мерење јачине ексхалације радона из грађевинских материјала

Узорци најчешће коришћених грађевинских материјала, доступних на домаћем тржишту, сакупљени су и постављени у претходно описану комору. Пре мерења сушени су на температури од 25 – 30°C током више од 10 дана. Узорци грануларне структуре су постављани у цилиндрични стаклени суд пречника 19 cm. Узорци чврсте структуре су коришћени у свом оригиналном облику. Масе узорака или њихове слободне површине су приказане у Табели 1. Комора је затворена и промена активносне концентрације радона у запремини коморе је праћена током 7 – 10 дана за сваки узорак. Сва мерења су вршена на собној температури и при нормалном притиску, док је релативна влажност ваздуха у унутрашњој ћелији уређаја RAD7 одржавана испод 10%. Добијени експериментални подаци су фитовани помоћу једначине (7.3). Коришћене су претходно добијене вредности за M' и λ_L , а нови параметри фитовања су били E и C_0 .

Слика 7.3 приказује пораст концентрације радона у комори за случај узорка бехатона.



Слика 7.3 Пораст концентрације радона у комори са временом излагања. Као узорак је коришћен бехатон

7.3 Гама спектрометрија

Узорци грађевинских материјала су након мерења јачине ексхалације уситњени и херметички затворени у пластичне Marinelli-посуде запремине 450 ml. С обзиром да

ексхалација радона нарушава радиоактивну равнотежу између ^{226}Ra и његових потомака, гама спектрометријска анализа запакованих узорака је вршена тек након 40 дана (≈ 10 периода полураспада ^{222}Rn), како би се осигурало успостављање поменуте равнотеже.

Специфичне активности природних радионукида (^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K) у узорцима су одређиване коришћењем германијумског детектора (*HPGe - High Purity Germanium*, модел *GEM30-70, ORTEC*) са енергетском резолуцијом (*FWHM - Full Width at Half Maximum*) од 1.85 keV на 1.33 MeV (^{60}Co) и 725 eV на 122 keV (^{57}Co), и релативном ефикасношћу од 30% на 1.33 MeV (^{60}Co). Енергетска калибрација је извршена коришћењем стандардног калибрационог извора типа MBSS 2 Чешког Метролошког Института. У циљу смањења фона, кућиште детектора је смештено у оловну заштиту дебљине 10 cm.

Снимање гама-спектра трајало је 24 h за сваки појединачни узорак. Специфична активност радијума, ^{226}Ra , одређена је на основу фотопикова олова ^{214}Pb (на енергији 351.9 keV) и бизмута ^{214}Bi (на енергијама 609.32 и 1764.49 keV). За одређивање специфичне активности торијума ^{232}Th коришћене су линије талијума ^{208}Tl (на енергијама 583.01 и 860.56 keV) и актинијума ^{228}Ac (на енергијама 338.32, 911.07 и 968.90 keV). Специфична активност калијума ^{40}K одређена је на основу интензитета гама линије на енергији 1460.75 keV.

7.4 Резултати мерења

7.4.1 Јачина ексхалације

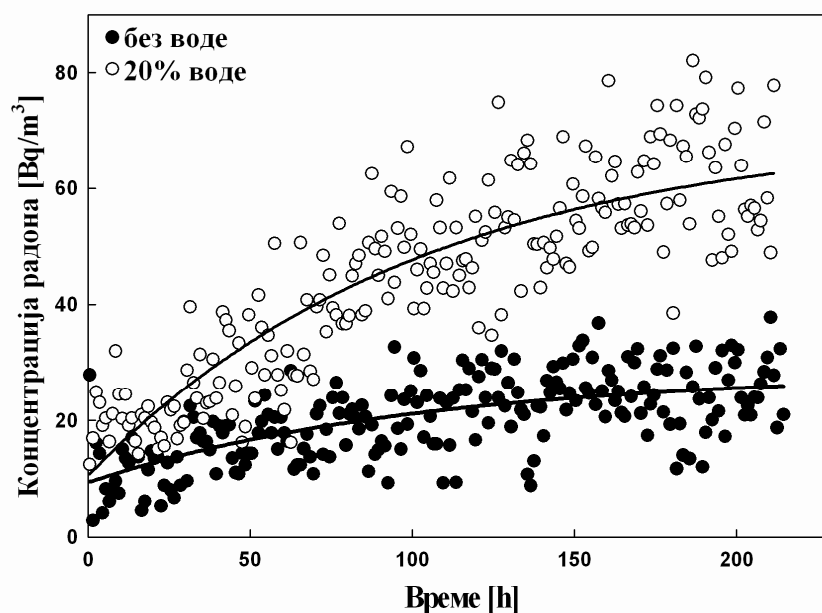
Табела 7.1 представља јачине ексхалације радона добијене за узорке различитих грађевинских материјала. Јачине ексхалације су изражене по јединици масе ($\text{y mBq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}$) за узорке грануларне структуре и по јединици површине ($\text{y mBq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$) за чврсте узорке. Површинска јачина ексхалације има вредности од $1.4 \text{ mBq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ до $855 \text{ mBq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, док се добијене масене јачине ексхалације крећу у опсегу од $1.3 \text{ mBq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}$ до $11.4 \text{ mBq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}$.

Последње две врсте Табеле 7.1 показују вредности добијене за суви песак и исти песак након додавања 20% воде. Присуство воде је повећало јачину ексхалације радона више од 2.5 пута. Вода у порама између зрна материјала повећава еманациону фракцију. Као што је раније поменуто, разлог за то је чињеница да је домет радона у води изузетно мали у поређењу са дометом у ваздуху, па постоји већа вероватноћа да се атоми радона који узмаком изађу из зрна зауставе у порама пре него што доспеју до неког од суседних зрна.

Табела 7.1 Површинске (E_A) и масене (E_m) јачине ексхалације радона из грађевинских материјала, добијене фитовањем експерименталних података

Бр.	МАТЕРИЈАЛ	Маса узорка [kg]	Површина узорка [m ²]	E_m [mBq kg ⁻¹ h ⁻¹]	E_A [mBq m ⁻² h ⁻¹]
1	Алабастер	0.802	-	5.2 ± 0.4	-
2	Бехатон	-	0.104	-	855 ± 7
3	Цемент 1	0.574	-	8.0 ± 0.7	-
4	Бела цигла	-	0.232	-	15 ± 1
5	Црвена цигла 1	-	0.244	-	12 ± 1
6	Цреп	-	0.106	-	46 ± 2
7	Креч	0.439	-	1.3 ± 0.3	-
8	Цемент 2	0.864	-	11.4 ± 0.3	-
9	Глет маса	1.057	-	1.3 ± 0.1	-
10	Црвена цигла 2	-	0.084	-	53 ± 3
11	Изолациона плоча	-	0.263	-	29 ± 1
12	Керамичке плочице 1	-	0.168	-	41 ± 2
13	Керамичке плочице 2	-	0.184	-	4.3 ± 0.8
14	Мермерне плочице	-	0.232	-	1.4 ± 0.9
15	Песак	0.808	-	6.8 ± 0.3	-
16	Песак + H ₂ O	1	-	17.0 ± 0.3	-

Слика 7.4 илуструје утицај влаге, приказујући пораст концентрације радона у запремини коморе за узорке бр. 15 и 16 из Табеле 7.1.



Слика 7.4 Пораст концентрације радона у комори за узорке сувог и овлаженог песка

7.4.2 Зависност јачине ексхалације радона од слободне површине грануларних узорка

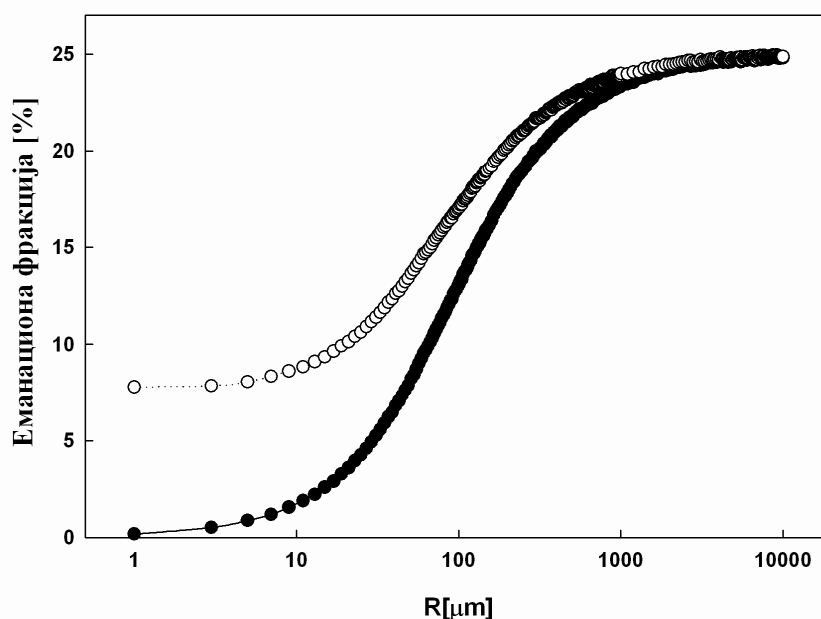
Оправданост изражавања јачине ексхалације радона по јединици масе грануларних узорка је испитана коришћењем одређене количине уситњене земље. Јачина ексхалације радона из истог узорка је мерена два пута, при чему је узорак био смештен у посуде различитих димензија. Табела 7.2 показује резултате ових мерења. Добијена површинска јачина ексхалације је, очигледно, обрнуто пропорционална величини слободне површине узорка. Међутим, у оба случаја су добијене сличне вредности масене јачине ексхалације, иако је слободна површина узорка у другом случају шест пута већа него у првом. То је у сагласности са претпоставком да готово сви атоми радона, који емирају из зрна грануларних материјала, пре или касније напусте узорак (уколико су димензије узорка релативно мале у поређењу са дифузионом дужином радона). То значи да је у овим случајевима јачина ексхалације радона потпуно одређена концентрацијом ^{226}Ra у узорку и еманационом фракцијом радона.

Табела 7.2 Површинске и масене јачине ексхалације узорка земљишта, постављеног у посуде различитих димензија

Слободна површина узорка (cm^2)	$E_A[\text{mBq m}^{-2} \text{h}^{-1}]$	$E_m[\text{mBq kg}^{-1} \text{h}^{-1}]$
44.1	16575.2	219
268.8	2895.3	233

Слика 7.5 приказује еманационе фракције радона за зрно на површини узорка и зрно окружено бесконачним бројем зрна, у функцији полупречника. Резултати су добијени Монте Карло методом за зрна SiO_2 , претпостављајући хомогену расподелу атома ^{226}Ra у површинском слоју зрна дебљине једнаке дometу радона у кварцу. Зрна су представљена као идентичне сфере, паковане по моделу заснованом на површински центрираној структури. Број симулација је 10^6 .

Еманациона фракција је већа за зрна на површини узорка, нарочито у области малих полупречника, из разлога што постоји мања вероватноћа да се радон угради у неко од суседних зрна. Сходно томе, повећање слободне површине би требало да доводи до значајног повећања еманације и ексхалације радона. Међутим, с обзиром да је дебљина површинског слоја зрна у узорку углавном мала у поређењу са димензијама целог узорка, овај допринос укупној еманационој фракцији је занемарљив.



Слика 7.5 Резултати добијени за зрно SiO_2 окружено великим бројем зрна (●) и зрно на површини узорка (○)

7.4.3 Поређење са резултатима других аутора

Табела 7.3 приказује поређење опсега добијених вредности јачина ексхалације са неким од резултата који су доступни у литератури.

Табела 7.3 Поређење добијених вредности јачина ексхалације са резултатима других аутора

Референце	Земља	Масена јачина ексхалације ($\text{mBq kg}^{-1} \text{h}^{-1}$)	Површинска јачина ексхалације ($\text{mBq m}^{-2} \text{h}^{-1}$)
Righi и Bruzzi (2006)	Италија	$ND^* - 250$	-
Khan и др. (1992)	Индија	-	12.6 – 169
Zhang и др. (2012)	Кина	-	1163 – 76500
Chen и др. (2010)	Канада	-	$ND^* - 13000$
Shoeib и Thabayneh (2014)	Египат	11 – 29	70 – 140
Kumar и Singh (2004)	Индија	0.14 – 15	5 – 507
Najam и др. (2013)	Ирак	210 – 650	720 – 2300
Stoulos и др. (2003)	Грчка	11 – 84	210 – 3510
Keller и др. (2001)	Немачка	-	180 – 1440
Ujic и др. (2010)	Србија	2.52 – 2232	$ND^* - 1224$
Овај рад	Србија	1.2 – 11.3	1.2 – 854

* ND – није детектовано

Измерене вредности су релативно ниске у поређењу са неким од резултата добијеним у другим земљама, али су у добром слагању са вредностима које су Ујић и др. (2010) раније мерили у Србији (коришћењем других метода). Изузетак је неколико узорака са највећим вредностима јачина ексхалације, које су поменути аутори бирали управо због повишеног садржаја ^{226}Ra .

7.4.4 Резултати гамаспектрометрије узорака грађевинских материјала

У Табели 7.4 приказани су резултати гамаспектрометријске анализе узорака грађевинских материјала. Измерене специфичне активности се крећу у опсегу од 0.9 до 73 Bq kg⁻¹ за ^{226}Ra , од 0.99 до 69.3 Bq kg⁻¹ за ^{232}Th и од 7.3 до 750 Bq kg⁻¹ за ^{40}K . Средње вредности специфичних активности износе 35, 39 и 368 Bq kg⁻¹ за ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K , респективно, и ниже су од светских просечних вредности за грађевинске материјале (50, 50 и 500 Bq kg⁻¹ [UNSCEAR, 1993]).

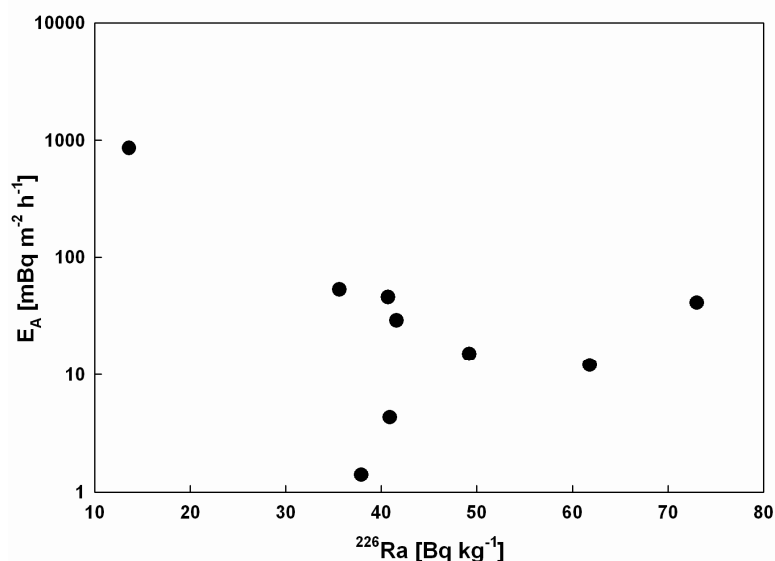
Табела 7.4 Резултати гамаспектрометријске анализе узорака

Бр.	МАТЕРИЈАЛ	^{226}Ra [Bq kg ⁻¹]	^{232}Th [Bq kg ⁻¹]	^{40}K [Bq kg ⁻¹]
1	Алабастер	13.7 ± 0.3	3.0 ± 0.2	138 ± 2
2	Бехатон	13.6 ± 0.3	14.5 ± 0.5	220 ± 2
3	Цемент 1	46.2 ± 0.6	20.0 ± 0.8	195 ± 2
4	Бела цигла	49.2 ± 0.7	59.0 ± 1.3	674 ± 4
5	Црвена цигла 1	61.8 ± 0.7	69.3 ± 1.3	652 ± 4
6	Цреп	40.7 ± 0.6	49 ± 1	626 ± 3
7	Креч	0.90 ± 0.08	ND*	7.3 ± 0.7
8	Цемент 2	54.4 ± 0.7	24.4 ± 0.8	211 ± 2
9	Глет маса	1.48 ± 0.13	0.99 ± 0.13	23.3 ± 0.8
10	Црвена цигла 2	35.6 ± 0.6	44.8 ± 1.1	469 ± 3
11	Изолатиона плоча	41.6 ± 1.6	65 ± 3	750 ± 10
12	Керамичке плочице 1	73.0 ± 0.8	58.8 ± 1.3	563 ± 4
13	Керамичке плочице 2	40.9 ± 0.5	56.2 ± 1.1	247 ± 2
14	Мермерне плочице	37.9 ± 0.5	61.8 ± 1.1	218 ± 2
15	Песак	14.0 ± 0.3	19.2 ± 0.7	528 ± 3

*ND – није детектовано

Слика 7.6 приказује измерене јачине ексхалације чврстих (компактних) грађевинских материјала у функцији концентрација ^{226}Ra (подаци из Табеле 7.1 и 7.4). Оправдано би било очекивати пораст јачине ексхалације са повећањем садржаја ^{226}Ra у узорцима, али се оваква тенденција не уочава на приказаној слици. Штавише, Пирсонов коефицијент корелације између ове две мерене величине има негативну вредност. То потврђује велику зависност

еманације и ексхалације радона од састава, структуре и особина самог материјала који садржи ^{226}Ra .



Слика 7.6 Површинска јачина ексхалације у функцији специфичне активности ^{226}Ra у узорцима

7.4.5 Поређење теоријских и експерименталних резултата

Коришћењем вредности измерених за узорак песка (узорак бр. 15) може се извршити грубо поређење експерименталних резултата са теоријским предвиђањима описаним у Глави 6.

У Табели 7.1 се може видети да измерена јачина ексхалације радона за овај узорак износи $6.8 \text{ mBq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}$, што значи да узорак у току једног часа у околни простор емитује $0.0068 \text{ Bq kg}^{-1} \cdot 0.808 \text{ kg} = 0.0054944 \text{ Bq}$ тј. $\frac{0.0054944 \text{ Bq}}{2.098 \cdot 10^{-6} \text{ Bq}} \approx 2619$ атома ^{222}Rn (где је

$\lambda = 2.098 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ константа радиоактивног распада радона).

Са друге стране, измерена специфична активност ^{226}Ra у овом узорку је 14 Bq kg^{-1} . То значи да се у узорку на сваких сат времена распадне $14 \text{ Bq kg}^{-1} \cdot 0.808 \text{ kg} \cdot 3600 \text{ s} \approx 40723$ језгара ^{226}Ra и настане исто толико језгара ^{222}Rn . Ако се апроксимативно претпостави да се зрна песка састоје од чистог SiO_2 и ако се средњи полупречник зрна процени на $R \approx 0.1 \text{ mm}$, теоријски добијена вредност еманационе фракције, за хомогену расподелу ^{226}Ra по целој запремини зрна, износи 0.015 % (Глава 6). То значи да би се, на основу теоријске процене, из узорка ослобађало само 6 атома радона током 1 h, што је за три реда величине мање од броја атома процењеног на основу експеримента (2619). Ако се ипак претпостави да су атоми

^{226}Ra , уместо по целој запремини, концентрисани само у површинском слоју зрна дебљине једнаке домету радона у кварцу ($\approx 38 \text{ nm}$), теоријска процена даје вероватноћу еманације од 13.1 %, што у разматраном случају предвиђа ослобађање 5335 атома ^{222}Rn у поре између зрна.

Очигледно је да претходно поређење теоријских и експерименталних резултата иде у прилог претпоставци о нехомогеној расподели атома ^{226}Ra у зрнима. Међутим, неслагање теоријских и експерименталних вредности се може приписати и претпоставци о постојању нанопора унутар зрна, као и чињеници да теоријски прорачуни описани у Глави 6 не узимају у разматрање дифузију радона у материјалу зрна, као ни друге процесе који могу додатно утицати на еманацију и ексхалацију.

8. ЕФИКАСНОСТ ДЕТЕКТОРА ОБЛИКА ДИСКА ЗА ЧЕСТИЦЕ КОНАЧНОГ ДОМЕТА ЕМИТОВАНЕ ИЗ ТАЧКАСТОГ ИЗВОРА

8.1 Геометријска ефикасност детектора

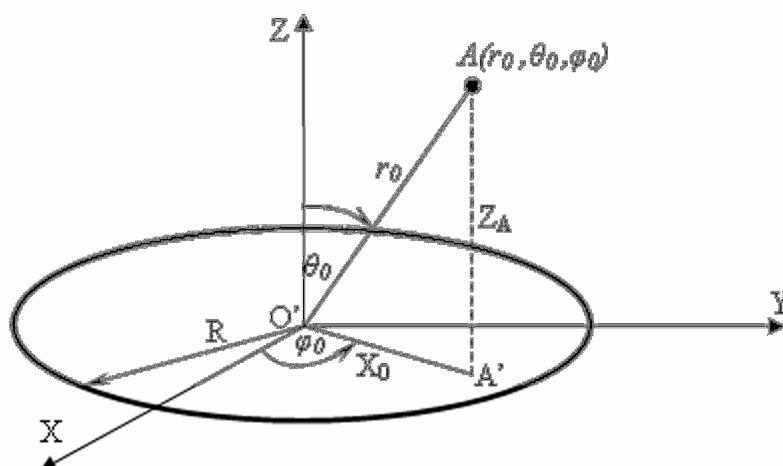
Одређивање активности извора зрачења помоћу различитих детекторских система намеће потребу одређивања ефикасности детектора. Процена геометријске ефикасности захтева познавање просторног угла под којим се из датог извора види активна површина детектора. Велики број аутора разматрао је овај проблем, узимајући у обзир различите облике детектора, као и различите геометрије извора [Abbas, 2006; Cook, 1980; Conway, 2006, 2010a, 2010b; Favorite, 2008; Gardner и Verghese 1971; Gotoh и Yagi, 1971; Green и др., 1974; Hosseini-Ashrafi и Spyrou, 1992; Jones, 1996; Pommé, 2007; Prata, 2003, 2004; Ruby, 1994; Tryka, 1997; Timus и др., 2007; Whitcher, 2002; Wielopolski, 1984; Yi и Jun, 1997]. Међутим, чак и у случају најједноставнијих комбинација као што су кружни детектор и тачкасти извор, аналитичко решавање проблема је прилично компликовано и захтева знатне математичке вештине. Проблем постаје још сложенији уколико се разматра извор који емитује честице са ограниченим дометом у средини која испуњава простор између извора и детектора.

У наставку ће бити изложено одређивање геометријске ефикасности кружног детектора за честице коначног домета, емитоване из тачкастог извора. Овај проблем се често везује за детекцију алфа-честица, па има значаја и при разматрању мерења радона и његових радиоактивних потомака који су алфа-емитери. Проблем ће бити разматран аналитички и биће раздвојено неколико случајева, у зависности од међусобног положаја извора и детектора.

Због једноставности је претпостављено да све честице емитоване из извора имају исти домет у разматраном медијуму тј. извор је моноенергетски и занемарено је раштркавање домета (*straggling*). У складу са тим, може се замислити сфера са центром у тачкастом извору и полупречником једнаким домету честица. Честице не могу напустити ову сферу, тако да је вероватноћа детекције једнака нули у случају када је детектор изван ње. У циљу једноставности, такође је претпостављено да све честице које доспеју до детектора бивају регистроване. Међутим, само онај део детектора који лежи унутар сфере је изложен

честицама емитованим из извора. Пресек сфере и детектора може имати различите облике у зависности од полупречника детектора, домета честица и положаја извора.

Геометрија разматраног проблема је приказана на Слици 8.1. Детектор је представљен кружницом полупречника R . Координатни почетак је постављен у центар детектора, а z -оса је нормална на његову површину, тако да детектор лежи у xOy равни. Извор честица је постављен у произвољној тачки A , са сферним координатама $(r_0, \theta_0, \varphi_0)$, и емитује честице са дометом D у простору између извора и детектора. Тачка A' представља пројекцију тачке A на xOy раван.



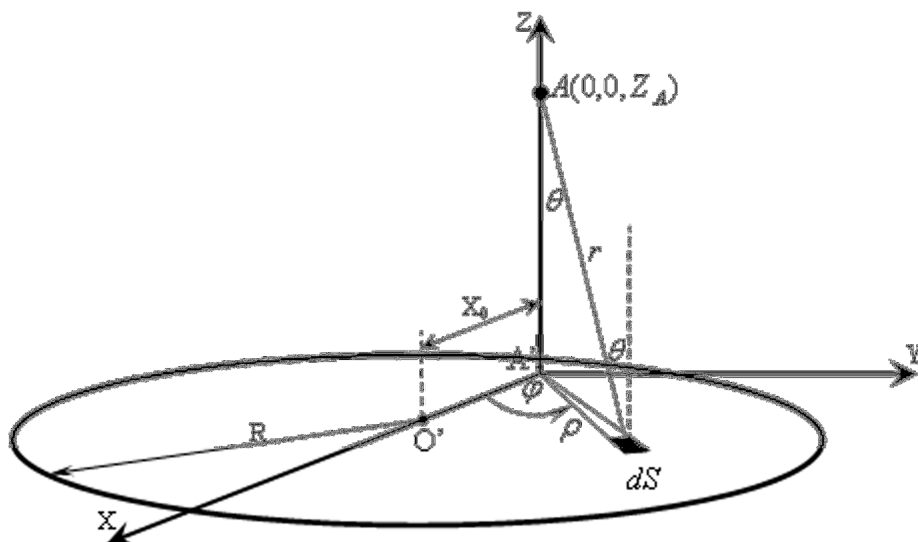
Слика 8.1 Кружни детектор полупречника R у xOy равни; извор се налази у произвољној тачки A , са координатама $(r_0, \theta_0, \varphi_0)$ у сферном и (X_0, φ_0, Z_A) у цилиндричном координатном систему

Проблем се значајно може поједноставити ако се координатни почетак премести у тачку A' а x -оса изабере тако да пролази кроз центар детектора. Ово је приказано на Слици 8.2. Координате извора у новом систему су $(0, 0, Z_A)$, а координате центра детектора су $(X_0, 0, 0)$.

На основу Слике 8.1 се могу написати следеће релације:

$$\begin{aligned} X_0 &= r_0 \sin \theta_0 \\ Z_A &= r_0 \cos \theta_0 \end{aligned} \tag{8.1}$$

Посматрајмо елементарну површину детектора dS , која се налази на растојању r од тачкастог извора, као што је приказано на Слици 8.2.



Слика 8.2 Центар координатног система је измеиштен у тачку A' , а осе су ротиране тако да центар детектора лежи на x -оси (у тачки O')

Вероватноћа да елемент површине dS буде погођен честицама емитованим из тачке A је дата са:

$$dP = \frac{d\Omega}{4\pi} = \frac{dS \cos \theta}{4r^2 \pi} \quad (8.2)$$

где $d\Omega$ представља просторни угао под којим се из тачке A види површина dS , а θ је угао између r и нормале на површину dS .

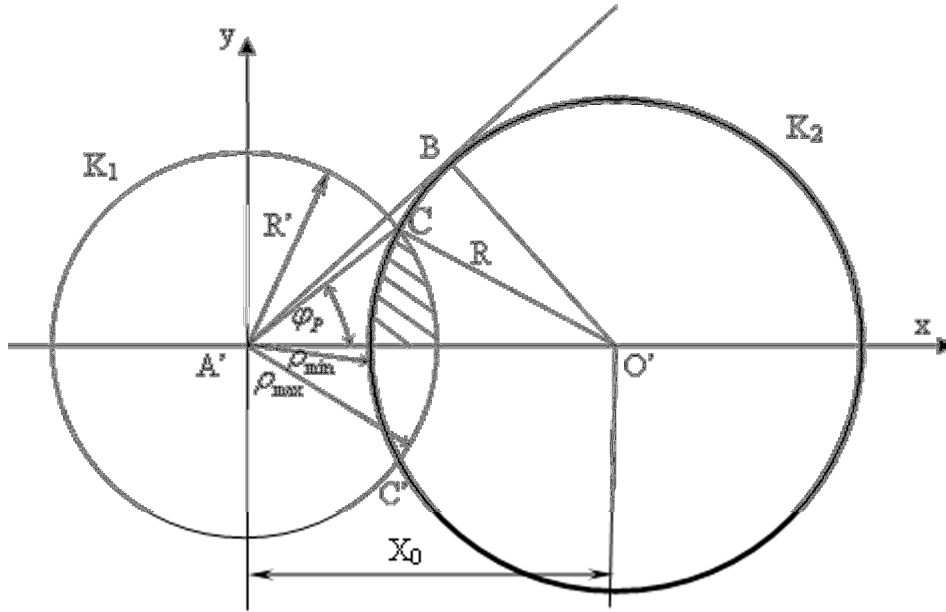
На основу геометрије приказане на Слици 8.2, ова вероватноћа се такође може изразити и преко поларних координата, при чему је $dS = \rho d\rho d\varphi$, $\cos \theta = Z_A / r$, а $r = \sqrt{Z_A^2 + \rho^2}$. Укупна вероватноћа да честица емитована из тачке A погоди детектор добија се интеграцијом по одређеном делу површине детектора:

$$P = \frac{Z_A}{4\pi} \int_{\varphi_{\min}}^{\varphi_{\max}} \int_{\rho_{\min}}^{\rho_{\max}} \frac{\rho d\rho d\varphi}{(\rho^2 + Z_A^2)^{3/2}} \quad (8.3)$$

Због симетрије проблема, довољно је извршити интеграцију по половини простора, а затим израз помножити са 2. То води до следеће једначине:

$$P = \frac{Z_A}{2\pi} \left[\int_0^{\varphi_{\max}} \frac{d\varphi}{\sqrt{\rho_{\min}^2 + Z_A^2}} - \int_0^{\varphi_{\max}} \frac{d\varphi}{\sqrt{\rho_{\max}^2 + Z_A^2}} \right] \quad (8.4)$$

Границе интеграције ($\rho_{\min}$, $\rho_{\max}$ и $\varphi_{\max}$) су одређене величином детектора и положајем извора. Оне се добијају у пресеку кружнице $(x - X_0)^2 + y^2 = R^2$ која представља детектор и сфере полупречника D , дефинисане једначином $x^2 + y^2 + (z - Z_A)^2 = D^2$, са центром у тачки $A(0,0,Z_A)$. Пресек сфере и xOy равни зависи од домета честица и положаја тачке A у односу на детектор. Један од примера је приказан на Слици 8.3.



Слика 8.3 Пресек кружница K_1 и K_2 (Случај 1). Шрафирана површина представља површину интеграције

Лева кружница (K_1), дефинисана једначином $x^2 + y^2 = R'^2$, представља пресек xOy равни и сфере полупречника D , са центром у тачки A . R' се може изразити као $R' = \sqrt{D^2 - Z_A^2}$. Кружница K_2 на десној страни Слике 8.3 представља детектор полупречника R .

У прва три случаја која ће бити разматрана, координатни почетак (A') се налази изван површине детектора. Коришћењем поларних координата, може се добити следећа једначина која дефинише кружницу детектора, K_2 , (за ова три случаја):

$$\rho^{\pm} = X_0 \cos \varphi \pm \sqrt{R^2 - X_0^2 \sin^2 \varphi} \quad (8.5)$$

Свакој вредности угла φ одговарају две вредности координате ρ : ρ^- која је ближа координатном почетку, и ρ^+ , која је даља. Тачке (ρ^-, φ) и (ρ^+, φ) се налазе на супротним странама кружнице K_2 .

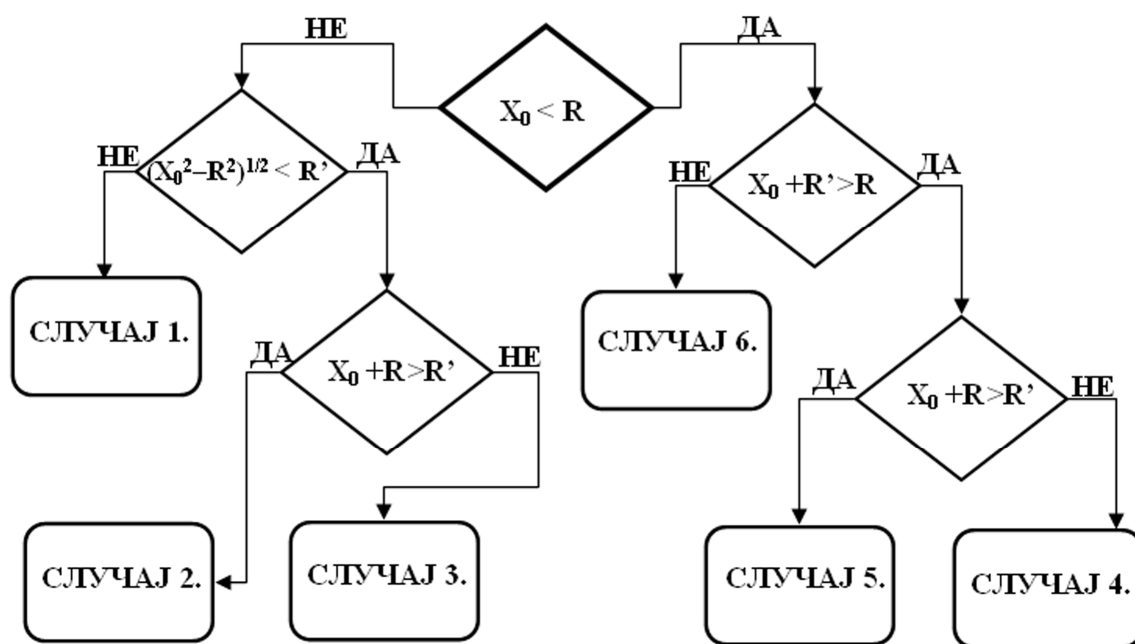
Интеграли означени са I^+ и I^- , дефинисани једначинама (8.6) и (8.7), ће се често користити у даљем разматрању.

$$\int_{\varphi_{\min}}^{\varphi_{\max}} \frac{d\varphi}{\sqrt{\left(X_0 \cos \varphi + \sqrt{R^2 - X_0^2 \sin^2 \varphi}\right)^2 + Z_A^2}} = I^+(\varphi_{\min}, \varphi_{\max}) \quad (8.6)$$

$$\int_{\varphi_{\min}}^{\varphi_{\max}} \frac{d\varphi}{\sqrt{\left(X_0 \cos \varphi - \sqrt{R^2 - X_0^2 \sin^2 \varphi}\right)^2 + Z_A^2}} = I^-(\varphi_{\min}, \varphi_{\max}) \quad (8.7)$$

Ови интеграли ће се рачунати нумерички.

У случајевима када је $X_0 > R + R'$ или $Z_A > D$, вероватноћа погађања детектора ће бити једнака нули. Оба услова значе да је детектор превише удаљен од извора, тако да честице домета D , емитоване из тачке А, не могу допрети до њега. Ако ови услови нису задовољени, вероватноћа ће бити већа од нуле и тада постоји неколико специфичних случајева који ће бити детаљно разматрани. Како би се случајеви међусобно разликовали, задати су одређени услови који морају бити задовољени. Алгоритам примене ових услова илустрован је на Слици 8.4.



Слика 8.4 Алгоритам разликовања случајева на основу задатих услова

8.1.1 Анализа појединачних случајева

Случај 1.

Овај случај је приказан на Слици 8.3. Важи $X_0 \geq R$ и $\sqrt{X_0^2 - R^2} \geq R'$. Први услов означава да се пројекција тачке А на хОу раван налази изван површине детектора. Да би се разумео други услов, потребно је размотрити Сliku 8.3; тачка В се добија повлачењем тангенте из тачке А' на кружницу детектора. Израз $\sqrt{X_0^2 - R^2}$ даје растојање између тачака А' и В. Дакле, услов $\sqrt{X_0^2 - R^2} \geq R'$ значи да је тачка В изван кружнице К₁.

Тачке С и С' означавају пресеке кружнице детектора и кружнице К₁. На Слици 8.3 приказан је угао φ_P који одговара овим тачкама пресека кружница.

Примена косинусне теореме на троугао А'СО' даје следећи израз:

$$\varphi_P = \arccos \frac{R'^2 + X_0^2 - R^2}{2X_0R'} \quad (8.8)$$

Враћањем на једначину (8.3), горња граница за интеграцију по променљивој φ је $\varphi_{max} = \varphi_P$. За доњу границу би требало узети угао $-\varphi_P$ али је због симетрије узета вредност $\varphi_{min} = 0$, а интеграл је затим помножен са 2, као што је раније поменуто.

Са Слике 8.3 се такође могу одредити границе интеграције по променљивој ρ :

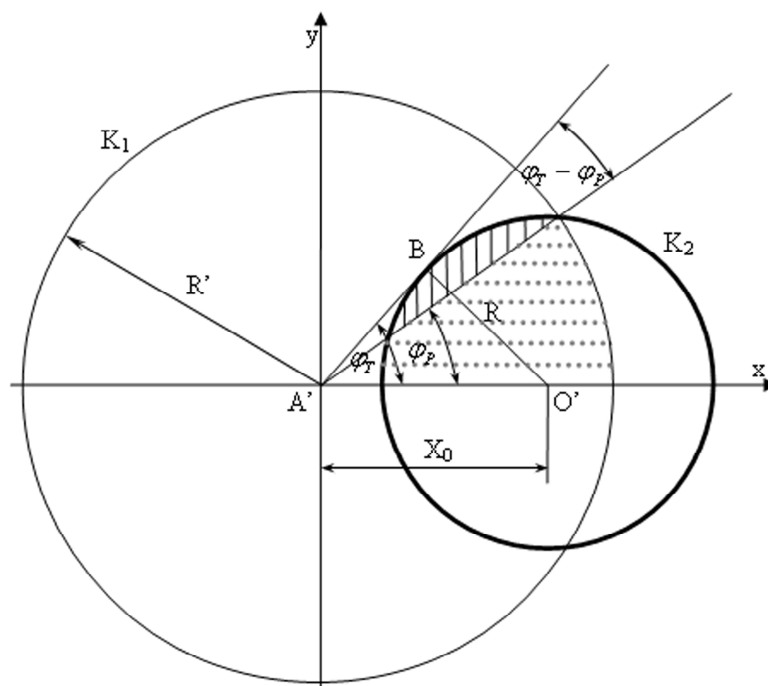
$$\begin{aligned} \rho_{min} &= \rho^- = X_0 \cos \varphi - \sqrt{R^2 - X_0^2 \sin^2 \varphi} \\ \rho_{max} &= R' = \sqrt{D^2 - Z_A^2} \end{aligned} \quad (8.9)$$

Ове границе се сада могу применити на једначину (8.4). Након решавања другог интеграла у загради и коришћења уведене ознаке за први интеграл, добија се израз за вероватноћу:

$$P_1 = \frac{Z_A}{2\pi} \left[I^-(0, \varphi_P) - \frac{\varphi_P}{D} \right] \quad (8.10)$$

Случај 2.

Овај случај је приказан на Слици 8.5.



Слика 8.5 Две области (шрафирана и тачкаста) се интеграле одвојено (Случај 2.)

Овде важи $X_0 \geq R$, (исто као и у Случају 1.), али је сада $\sqrt{X_0^2 - R^2} < R'$, што значи да је тачка В унутар кружнице K_1 . У овом случају се поставља и додатни услов: $X_0 + R > R'$. Дакле, само део детектора је изложен честицама емитованим из тачке А. Угао φ_T (Слика 5) се дефинише на следећи начин:

$$\varphi_T = \arcsin \frac{R}{X_0} \quad (8.11)$$

У овом случају, вероватноћа се може изразити преко збира два члана. Први члан се односи на пресечну површину која лежи унутар угла φ_p (поље означено тачкицама на Слици 8.5). Други члан представља вероватноћу погађања дела пресечне површине који лежи између углова φ_p и φ_T (шрафирана област на Слици 8.5). Границе интеграције за рачунање првог члана су: $\rho_{\min 1} = \rho^-$, $\rho_{\max 1} = R'$ и $\varphi_{\max 1} = \varphi_p$. На основу тога, вероватноћа (P_{21}) погађања дела пресечне површине, који је обухваћен углом φ_p , има исти облик као и вероватноћа дата једначином (8.10).

Израз за други члан се може добити коришћењем следећих граница интеграције:

$(\rho_{\min 2}, \rho_{\max 2}) = (\rho^-, \rho^+)$ и $(\varphi_{\min 2}, \varphi_{\max 2}) = (\varphi_P, \varphi_T)$. Вероватноћа погађања другог дела пресечне површине, који лежи унутар угла $\varphi_T - \varphi_P$, може се изразити:

$$P_{22} = \frac{Z_A}{2\pi} [I^-(\varphi_P, \varphi_T) - I^+(\varphi_P, \varphi_T)] \quad (8.12)$$

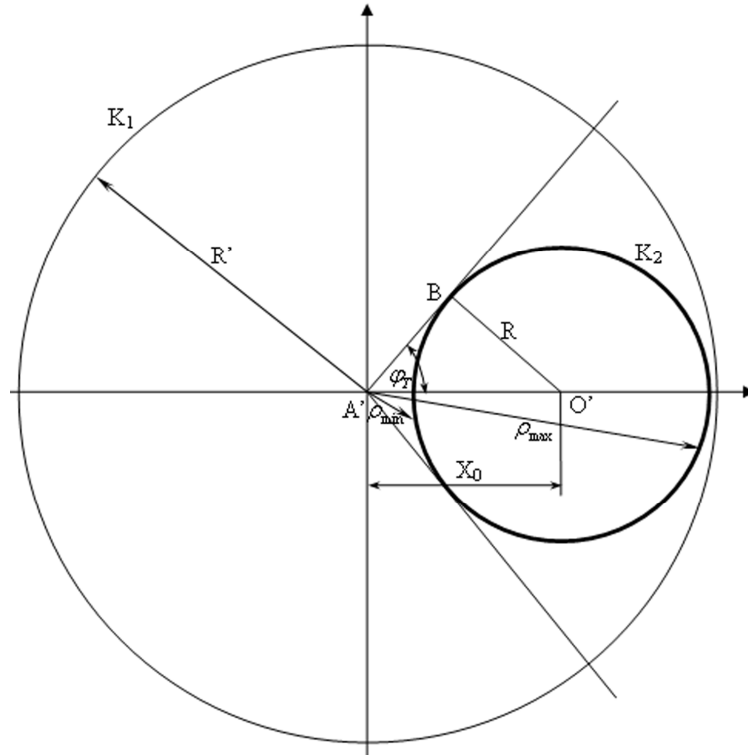
Укупна вероватноћа је збир ове две вероватноће (P_{21} и P_{22}):

$$P_2 = \frac{Z_A}{2\pi} \left[I^-(0, \varphi_T) - I^+(\varphi_P, \varphi_T) - \frac{\varphi_P}{D} \right] \quad (8.13)$$

Случај 3.

Геометрија овог случаја је приказана на Слици 8.6. Услови који овде важе су:

$X_0 \geq R$, $\sqrt{X_0^2 - R^2} < R'$ и $X_0 + R \leq R'$. Прва два услова имају исто значење као и у претходном случају. Трећи услов се односи на то да је у овом случају цела површина детектора изложена честицама емитованим из тачке А.



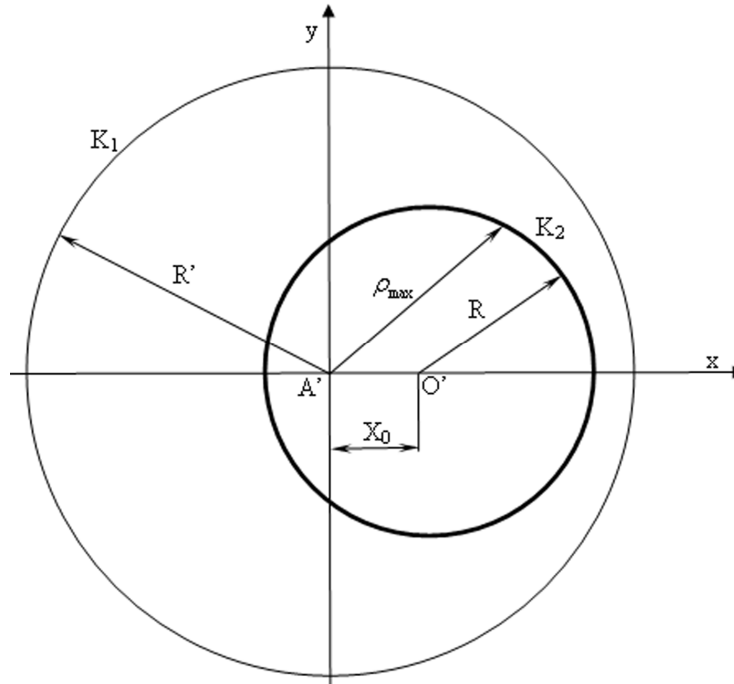
Слика 8.6 Цела површина детектора изложена је честицама емитованим из тачке А, а тачка А' је изван кружнице K_2 (Случај 3.)

Када се границе $(\rho_{\min}, \rho_{\max}) = (\rho^-, \rho^+)$ и $\varphi_{\max} = \varphi_T$ уврсте у једначину (8.4), добија се вероватноћа за овај случај:

$$P_3 = \frac{Z_A}{2\pi} [I^-(0, \varphi_T) - I^+(0, \varphi_T)] \quad (8.14)$$

Случај 4

Геометрија је приказана на Слици 8.7. Овај случај, као и наредна два, задовољава услов $X_0 < R$ који значи да тачка A' (пројекција тачке A на раван детектора) припада површини детектора. Овде важе и додатни услови: $X_0 + R' > R$ и $X_0 + R \leq R'$. Слично као и у Случају 3, цела површина детектора је поново изложена честицама тј. кружница K_2 (која представља детектор) се цела налази унутар кружнице K_1 .



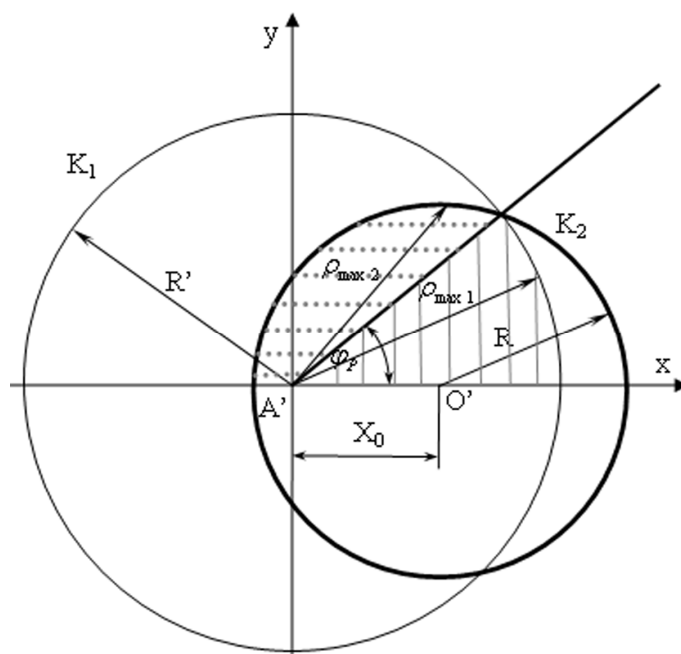
Слика 8.7 Цела површина детектора је изложена честицама емитованим из тачке A , а тачка A' се налази унутар кружнице K_2 (Случај 4)

Једначина која описује кружницу детектора у поларном координатном систему је: $\rho_D = X_0 \cos \varphi + \sqrt{R^2 - X_0^2 \sin^2 \varphi}$. За овај и наредна два случаја, угао φ има вредности од 0 до 2π , тј. од 0 до π , ако се разматра само половина површине. Са Слике 8.7 се може закључити да су границе интеграције у овом случају: $(\rho_{\min}, \rho_{\max}) = (0, \rho_D)$ и $\varphi_{\max} = \pi$. Ове границе треба заменити у једначини (8.4). Решавањем првог интеграла у загради и коришћењем уведене ознаке за други интеграл, добија се израз:

$$P_4 = \frac{1}{2} \left[1 - \frac{Z_A}{\pi} I^+(0, \pi) \right] \quad (8.15)$$

Случај 5.

Случај је приказан на Слици 8.8, а услови који важе су: $X_0 < R$, $X_0 + R' > R$ и $X_0 + R > R'$. Само део детектора може бити погођен честицама тј. кружница детектора K_2 је делом унутар кружнице K_1 , а делом изван ње. Слично као у Случају 2., потребно је дефинисати два интеграла. Први интеграл даје вероватноћу погађања дела површине који лежи унутар угла φ_P . Други интеграл се односи на остатак површине који се налази између углова φ_P и π . Угао φ_P је одређен тачком пресека кружница K_1 и K_2 и такође се може одредити помоћу једначине (8.8).



Слика 8.8 Тачка A' се налази на површини детектора (унутар кружнице K_2), али је само део детектора изложен честицама (Случај 5)

Границе интеграције за први члан су: $(\rho_{\min 1}, \rho_{\max 1}) = (0, R')$ и $\varphi_{\max 1} = \varphi_P$. Након решавања интеграла у једначини (8.4), добија се једноставан израз за прву вероватноћу:

$$P_{51} = \frac{D - Z_A}{2\pi D} \varphi_P \quad (8.16)$$

Границе друге интеграције су: $(\rho_{\min 2}, \rho_{\max 2}) = (0, \rho_D)$ и $(\varphi_{\min 2}, \varphi_{\max 2}) = (\varphi_P, \pi)$. Када се ове границе примене, добија се следеће:

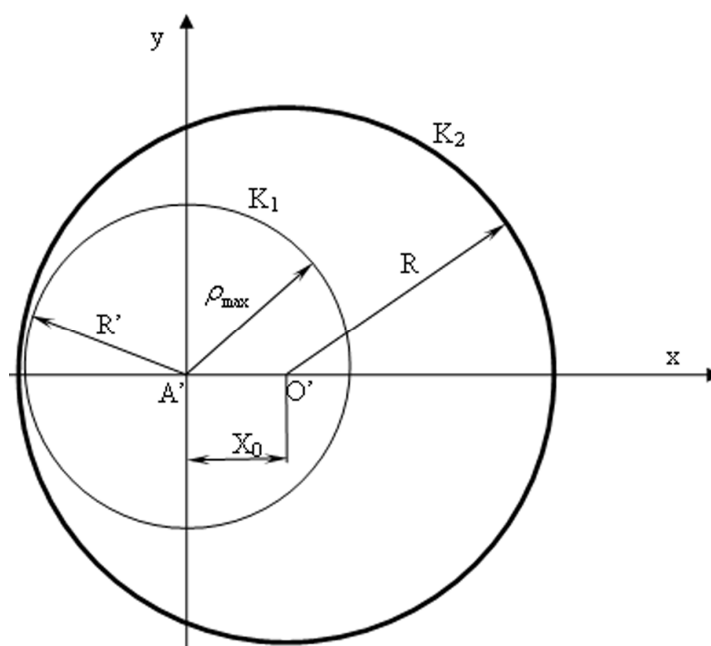
$$P_{52} = \frac{Z_A}{2\pi} \left[\frac{1}{Z_A} (\pi - \varphi_P) - I^+(\varphi_P, \pi) \right] \quad (8.17)$$

Укупна вероватноћа за Случај 5 је: $P_5 = P_{51} + P_{52}$. Сабирањем чланова изражених у једначинама (8.16) и (8.17), добија се коначни израз:

$$P_5 = \frac{Z_A}{2\pi} \left[\frac{\pi}{Z_A} - \frac{\varphi_P}{D} - I^+(\varphi_P, \pi) \right] \quad (8.18)$$

Случај 6.

Геометрија је приказана на Слици 8.9, а услови су: $X_0 < R$ и $X_0 + R' \leq R$. Други услов прави разлику између овог и претходна два случаја. Кружница K_1 се потпуно налази унутар кружнице K_2 .



Слика 8.9 Тачка A' је на површини детектора. Цела кружница K_1 лежи унутар кружнице K_2 (Случај 6)

Овај случај је најједноставнији и границе интеграције су: $\rho_{\min} = 0$, $\rho_{\max} = R'$ и $\varphi_{\max} = \pi$. Када се интеграл у једначини (8.4) реше применом ових граница, вероватноћа се може одредити на једноставан начин, помоћу формуле:

$$P_6 = \frac{D - Z_A}{2D} \quad (8.19)$$

8.1.2 Поређење са Монте Карло прорачунима

За сваки од претходно анализираних случајева изабрано је неколико комбинација полупречника детектора и положаја извора. Затим су примењене одговарајуће једначине за дате случајеве. По потреби, неки од интеграла су решавани нумерички. Исте вероватноће су такође одређене коришћењем Монте Карло симулација. Добијени резултати су приказани у Табели 8.1.

Табела 8.1 Поређење резултата добијених аналитички и Монте Карло методом

Случај	Координате		Полупречник детектора	Вероватноћа (аналитички)	Вероватноћа (Монте Карло)
	извора				
	r_0 [cm]	θ_0 (deg ⁰)			
1	6	47	3	1.252	1.253
1	7	57	3.5	0.534	0.534
1	9	70	7	3.572	3.569
2	4	79	2	1.49	1.489
2	5	18	1	0.436	0.435
2	8	65	6.5	4.827	4.823
2	10	85	9	6.869	6.875
3	1	47	0.5	4.442	4.439
3	4	54	0.5	0.231	0.231
3	3.5	39	1.5	3.526	3.522
4	0.5	12	2	38.101	38.09
4	1	30	2	29.451	29.45
4	2	10	0.5	1.475	1.475
4	3	8	2	8.392	8.39
5	2	40	5	33.541	33.54
5	7	60	7.5	11.253	11.25
5	11	74	13	17.649	17.64
6	1	70	8	46.579	46.57
6	5	75	11	37.059	37.04
6	10	62	12	3.053	3.053

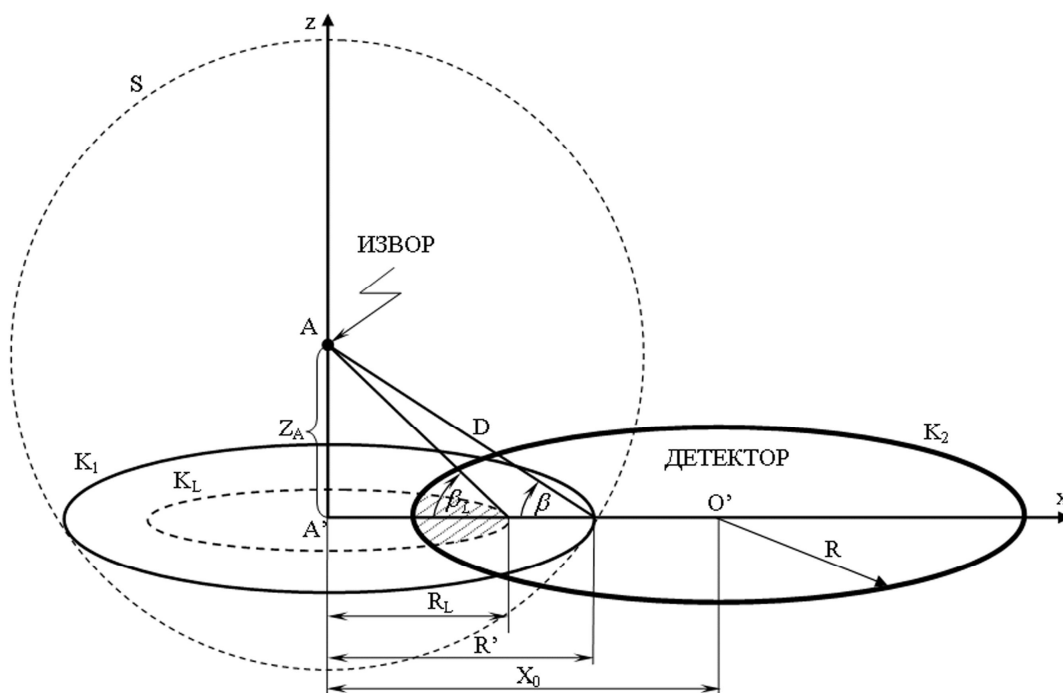
За сваки појединачни случај извршено је 10^6 успешних симулација. Излазни критеријум је био број погодака (10^6), тако да је укупан број симулација био различит у различитим случајевима. Сходно томе, релативна стандардна грешка је 0.1 %. За домет је изабрана вредност $D = 5$ cm, која одговара домету алфа-честица са почетном енергијом 6.28 MeV у ваздуху, под нормалним атмосферским условима. Из Табеле 1 се види да постоји добро слагање између резултата добијених аналитички и применом Монте Карло симулација.

8.2 Разматрање критичног угла детекције

Проблем одређивања ефикасности детектора за честице коначног домета може бити од значаја при детекцији алфа-честица помоћу чврстих траг детектора (SSNT) који се често користе при мерењима концентрација радона, торона и њихових потомака у ваздуху. Претходно разматрање било је засновано на претпоставци да детектор региструје све честице које дотакну његову површину тј. карактеристике самог детектора нису узете у разматрање. Међутим, детекција алфа-честица, између осталог, зависи од и од угла под којим честице падају на детектор. Честица која продре у пластични материјал SSNT–детектора ствара оштећења дуж своје путање. Нагризање одговарајућим растворима затим омогућава формирање трагова који се могу видети под оптичким микроскопом. Уколико је упадни угао честице (у односу на површину детектора) мањи од критичног угла, траг честице неће бити видљив након нагризања тј. честица неће бити детектована. Ова чињеница мора бити узета у разматрање при одређивању ефикасности траг детектора. За дате услове нагризања, критични угао се може сматрати функцијом упадне енергије честице [Barillon и др., 1995; Calamosca и др., 2003].

Нека поново важи претпоставка да је извор искључиво моноенергетски и да се раштркавање домета може занемарити тј. да све честице емитоване из тачкастог извора имају потпуно исти домет у средини која их окружује. Узимајући ово упрошћење у обзир, поново се може замислити сфера са центром у извору и полупречником једнаким домету, тако да је само део детектора који лежи унутар ове сфере изложен упаду честица.

Аналитички израз за одређивање вероватноће погађања кружног детектора полупречника R честицама коначног домета, D , емитованим из тачкастог извора, дат је једначином (8.4). Зависно од случаја, границе интеграције дате у овој једначини претходно су одређиване на основу величине детектора, домета честица и положаја извора, тј. на основу површине детектора која лежи унутар сфере домета честица.



Слика 8.10 Честице падају на површину детектора под различитим угловима (β). Кружница K_L одређена је углом β_L који је дефинисан у тексту

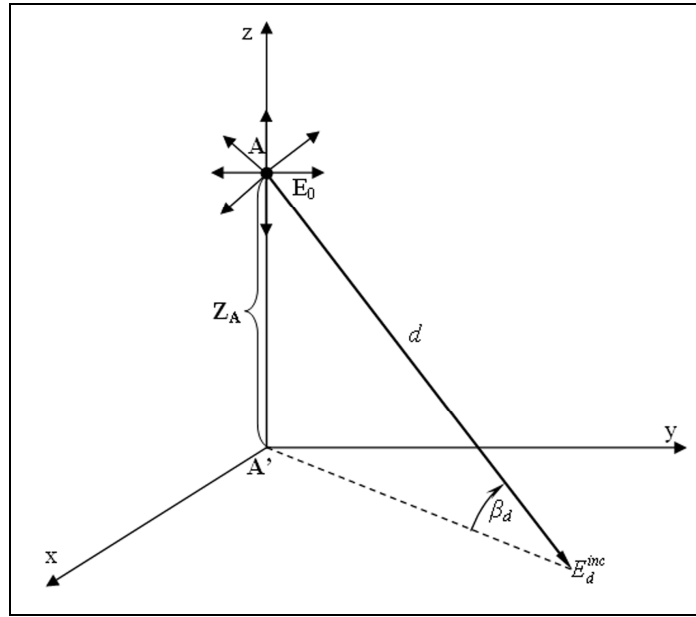
Слика 8.10 приказује сферу S са центром у тачки извора A и полупречником једнаким домету честица, D . Кружница K_1 (са полупречником $R' = \sqrt{D^2 - Z_A^2}$) добија се као пресек сфере S и xOy равни. Кружница K_2 поново представља детектор полупречника R . Пресек кружница K_1 и K_2 одређује део површине детектора који је изложен упаду честица емитованих из тачке A . Међутим, не морају све честице које погоде овај део детектора бити и регистроване. Оне могу упасти на површину детектора под различитим угловима, β , зависно од правца емисије. Оне честице које падну на детектор под углом мањим од критичног угла, θ_c (у односу на површину детектора), неће бити детектоване, што ће смањити претходно добијену ефикасност.

Слика 8.11 приказује тачкасти извор који емитује честице са почетном енергијом E_0 , у свим могућим правцима у простору. Честица која прелази растојање d , губи део своје енергије и погађа xOy раван под углом β_d и са упадном енергијом $E_d^{inc} = E^{inc}(d)$. На основу губитка енергије честице, растојање d се може изразити преко следећег интеграла:

$$d = \int_{E_d^{inc}}^{E_0} S^{-1}(E) dE \quad (8.20)$$

где је $S(E)$ функција зауставне моћи за разматране честице у средини која испуњава простор између извора и детектора. На основу Сlike 8.11, исто растојање d се може изразити и на други начин:

$$d = \frac{Z_A}{\sin \beta_d} \quad (8.21)$$



Слика 8.11 Тачкасти извор емитује честице у свим правцима у простору. Честице које прелазе растојање d и падају на xOy раван под углом β_d имају упадну енергију E_d^{inc}

Комбинацијом једначина (8.20) и (8.21) може се изразити веза између упадног угла, β , и упадне енергије E^{inc} :

$$\beta(E^{inc}) = \arcsin \left(\frac{Z_A}{\int_{E^{inc}}^{E_0} S^{-1}(E) dE} \right) \quad (8.22)$$

Упадна енергија E^{inc} може имати вредности од 0 до максималне вредности $E_{Z_A}^{inc}$ која одговара честицама које прелазе растојање Z_A и упадају на xOy раван под правим углом. Упадни угао, β , има вредности у опсегу од $\beta_D = \arcsin(Z_A/D)$ до $\beta_{Z_A} = 90^\circ$.

За константне услове нагризања траг детектора, критични угао детекције, θ_C , се може изразити у функцији упадне енергије E^{inc} . Под претпоставком да честица која пређе растојање d погоди површину детектора, може се очекивати да она буде детектована само ако је упадни угао, β_d , већи или једнак критичном углу, θ_C , који одговара упадној енергији E_d^{inc} . Ако се једначина:

$$\beta(E_L^{inc}) = \theta_C(E_L^{inc}) \quad (8.23)$$

реши по E_L^{inc} , у интервалу $[0, E_{Z_A}^{inc}]$, добија се тачка пресека две функције, $\beta(E^{inc})$ и $\theta_C(E^{inc})$. Ова тачка омогућава одређивање интервала упадне енергије, E^{inc} , за који важи услов $\beta(E^{inc}) \geq \theta_C(E^{inc})$ тј. одређивање површине детектора коју честице погађају под угловима већим или једнаким критичном углу. Тај део површине детектора треба узети као површину интеграције у једначини (8.4), у циљу добијања тачнијих израза за одређивање вероватноће детекције.

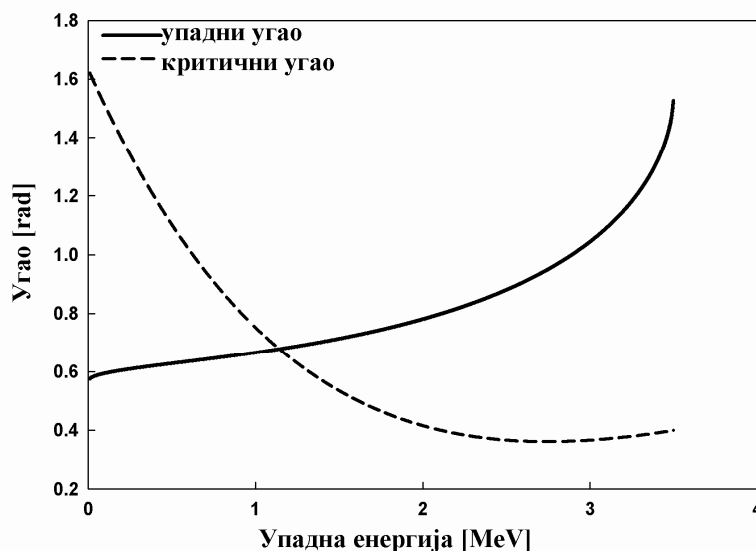
Слика 8.12 приказује зависност упадног угла, β , и критичног угла детекције, θ_C , од упадне енергије за CR-39 детектор и алфа-честице са почетном енергијом $E_0 = 6$ MeV. Претпостављено је да се тачкасти извор налази у ваздуху, на висини $Z_A = 2$ cm. Упадни угао је добијен коришћењем једначине (8.22) док је за зависност критичног угла од упадне енергије коришћена функција [Calamosca et al., 2003]:

$$\theta_C(E^{inc}) = 90 - \left[380.0 \cdot e^{(-0.286 \cdot (E^{inc} - 0.050))} \times (1 - e^{(-0.186 \cdot (E^{inc} - 0.050))}) \right] \quad (8.24)$$

где је E^{inc} изражено у MeV, а θ_C у степенима. Функција је добијена за нагризање у стандардним условима (6.25 N раствор NaOH на 70°C) у трајању од 6 h.

Тачка пресека две функције, $\beta(E^{inc})$ и $\theta_C(E^{inc})$, одређује енергију E_L^{inc} која представља решење једначине (8.23). Конкретно за овај случај добијена је вредност $E_L^{inc} \approx 1.15$ MeV. Са Сlike 8.12 је очигледно да је за $E_L^{inc} \leq E^{inc} \leq E_{Z_A}^{inc}$, испуњен услов $\beta(E^{inc}) \geq \theta_C(E^{inc})$, што значи да ће честице које погоде детектор са енергијама из овог интервала бити регистроване. Упадни угао који одговара енергији E_L^{inc} може се обележити са $\beta_L = \beta(E_L^{inc})$ и он одређује кружницу K_L у xOy равни, са центром у тачки A' (Слика 8.10). Полупречник кружнице је одређен на следећи начин:

$$R_L = \frac{Z_A}{\operatorname{tg} \beta_L} \quad (8.25)$$



Слика 8.12 Упадни и критични угао у функцији упадне енергије. Тачка пресека ове две функције одређује енергију E_L^{inc}

Због малог упадног угла, честице које погоде део детектора који се налази између кружница K_1 и K_L , неће бити детектоване тј. неће дати видљиве трагове након нагризања. Дакле, уколико се у разматрање укључи и критични угао детекције, границе површине интеграције у једначини (8.4) ће бити одређене пресеком кружница K_L и K_2 , дефинисаних једначинама $x^2 + y^2 = R_L^2$ и $(x - X_0)^2 + y^2 = R^2$, респективно.

Као што је већ речено, у случају када је $Z_A > D$ или $R + R' < X_0$, вероватноћа погађања детектора ће бити једнака нули. С обзиром на постојање критичног угла, намеће се још један додатни услов за детекцију честица: $R + R_L \geq X_0$. Ако овај услов није задовољен, вероватноћа детекције ће бити једнака нули чак и ако је $R + R' > X_0$.

Ако је $R + R_L < X_0$, кружнице K_L и K_2 се не пресецају, па ће, чак и у случају да честице успеју да погоде детектор, њихови упадни углови (у односу на површину детектора) бити мањи од критичног тј. оне неће бити детектоване. У супротном, поново ће се јавити неколико случајева, у зависности од положаја извора у односу на детектор. Појединачним разматрањем, добиће се изрази за израчунавање вероватноће детекције, од којих ће већина садржати неки од раније уведених интеграла, I^- и I^+ .

Следећи случајеви су аналогни случајевима и сликама из претходног поглавља, са једином разликом што се, уместо кружнице K_1 , сада разматра кружница K_L , па у свим

условима и једначинама уместо полупречника R' фигурише полупречник R_L . Битно је напоменути да се ова аналогија односи на геометријска и математичка разматрања, али одређена комбинација положаја и димензија детектора, која је претходно сврставана у неки од случајева, не мора обавезно припадати истом случају када се у обзир узме критични угао детекције.

8.2.1 Анализа појединачних случајева

Случај 1

Овде важе следеће релације: $X_0 \geq R$, $\sqrt{X_0^2 - R^2} \geq R_L$. Коришћењем поларних координата, кружница детектора, K_2 , се, као и раније, дефинише једначином: $\rho^\pm = X_0 \cos \varphi \pm \sqrt{R^2 - X_0^2 \sin^2 \varphi}$. Исти израз се користи и за наредна два случаја.

Тачку пресека кружница K_L и K_2 одређује угао:

$$\varphi_p^* = \arccos \frac{R_L^2 + X_0^2 - R^2}{2X_0 R_L} \quad (8.26)$$

Након примене граница интеграције: $(\rho_{\min}, \rho_{\max}) = (\rho^-, R_L)$ и $\varphi_{\max} = \varphi_p^*$ и замене R_L из једначине (8.25), добија се израз за вероватноћу:

$$P_1 = \frac{Z_A}{2\pi} \left[I^-(0, \varphi_p^*) - \frac{\varphi_p^*}{Z_A} \frac{\operatorname{tg} \beta_L}{\sqrt{1 + \operatorname{tg}^2 \beta_L}} \right] \quad (8.27)$$

Коришћењем тригонометријских идентитета, претходни израз се може упростити:

$$P_1 = \frac{Z_A}{2\pi} \left[I^-(0, \varphi_p^*) - \frac{\varphi_p^*}{Z_A} \sin \beta_L \right] \quad (8.28)$$

Случај 2

Задовољени су услови: $X_0 \geq R$, $\sqrt{X_0^2 - R^2} < R_L$ и $X_0 + R > R_L$. Израз за вероватноћу садржи два члана. Први се добија интеграцијом једначине (8.4) у границама: $(\rho_{\min 1}, \rho_{\max 1}) = (\rho^-, R_L)$ и $\varphi_{\max} = \varphi_p^*$. Границе интеграције за други члан су: $(\rho_{\min 2}, \rho_{\max 2}) = (\rho^-, \rho^+)$ и $(\varphi_{\min 2}, \varphi_{\max 2}) = (\varphi_p^*, \varphi_T)$, где φ_T и овде представља угао између x-осе

и тангенте повучене из координатног почетка на кружницу детектора и добија се из једначине (8.11).

Коначни израз за вероватноћу је:

$$P_2 = \frac{Z_A}{2\pi} \left[I^-(0, \varphi_T) - I^+(\varphi_P^*, \varphi_T) - \frac{\varphi_P^*}{Z_A} \sin \beta_L \right] \quad (8.29)$$

Случај 3

Овај случај одређују услови: $X_0 \geq R$, $\sqrt{X_0^2 - R^2} < R_L$ и $X_0 + R \leq R_L$. Последњи услов указује на то да је цела површина детектора унутар кружнице K_L , тј. све честице које падају на детектор имају упадни угао већи од критичног. Израз за вероватноћу има облик:

$$P_3 = \frac{Z_A}{2\pi} [I^-(0, \varphi_T) - I^+(0, \varphi_T)] \quad (8.30)$$

Случај 4

Задовољени су услови: $X_0 < R$, $X_0 + R_L > R$ и $X_0 + R \leq R_L$.

С обзиром да је читава површина детектора поново обухваћена кружницом K_L , угао β_L не фигурише у изразу за вероватноћу детекције:

$$P_4 = \frac{1}{2} \left[1 - \frac{Z_A}{\pi} I^+(0, \pi) \right] \quad (8.31)$$

Случај 5

Овде важе услови: $X_0 < R$, $X_0 + R_L > R$ и $X_0 + R > R_L$. Вероватноћа се изражава као збир две вероватноће. Прва вероватноћа се добија интеграцијом једначине (8.4) у границама: $(\rho_{\min 1}, \rho_{\max 1}) = (0, R_L)$, $\varphi_{\max 1} = \varphi_P^*$, док су границе за другу интеграцију: $(\rho_{\min 2}, \rho_{\max 2}) = (0, \rho_D)$ и $(\varphi_{\min 2}, \varphi_{\max 2}) = (\varphi_P^*, \pi)$. Укупна вероватноћа има облик:

$$P_5 = \frac{1}{2} \left[1 - \frac{Z_A}{\pi} I^+(\varphi_P^*, \pi) - \frac{\varphi_P^*}{\pi} \sin \beta_L \right] \quad (8.32)$$

Случај 6

Случај дефинишу следећи услови: $X_0 < R$ и $X_0 + R_L \leq R$. Израз за вероватноћу детекције не зависи од полупречника детектора. Применом $(\rho_{\min}, \rho_{\max}) = (0, R_L)$ и $\varphi_{\max} = \pi$ у једначини (8.4), добија се једноставан израз:

$$P_6 = \frac{1}{2}[1 - \sin \beta_L] \quad (8.33)$$

8.2.2 Поређење са Монте Карло резултатима

Неколико различитих комбинација полупречника детектора и положаја извора је изабрано у циљу илустровања сваког од претходних случајева. Претпостављено је да тачкасти извор емитује честице са почетном енергијом $E_0 = 6 \text{ MeV}$, што одговара енергији алфа-честица које емитује ^{218}Po . Функција зауставне моћи $S(E)$ је добијена фитовањем података добијених из SRIM-2006 програма, узимајући ваздух као околни медијум. Интеграл у једначини (8.22) решен је нумеричким методама. Разматран је CR-39 детектор кружног облика, а критични угао је рачунат коришћењем једначине (8.24). Одговарајући аналитички изрази су затим примењени за израчунавање вероватноће детекције. У циљу провере, припремљен је Монте Карло програм који рачуна исте вероватноће, такође узимајући у обзир постојање критичног угла. Резултати обе методе су представљени у Табели 8.2

Табела 8.2 Ефикасност детекције добијена аналитички и применом Монте Карло симулација, узимајући у обзир постојање критичног угла. Резултати се односе на CR-39 детектор и алфа-честице са почетном енергијом $E_0 = 6 \text{ MeV}$.

Случај	Координата детектора X_0 [cm]	Координата извора Z_A [cm]	Полупречник детектора R [cm]	Ефикасност детекције (аналитички) [%]	Ефикасност детекције (Монте Карло) [%]
1	3.5	1	2	1.28	1.28
1	4	1	3	3.50	3.52
1	4	2.5	3	1.8	1.82
1	5	1.5	4	3.91	3.94
2	3	0.5	3	10.33	10.4
2	1.5	1	1.5	11.68	11.7
2	2.5	1	2.5	13.4	13.4
3	1	1	1	8.93	8.98
3	1.5	1	1	4.93	4.95
3	0.5	1.5	0.5	2.25	2.23
4	1	1.5	1.5	11.84	11.9
4	0.5	1	2	26.95	27.1
4	1	1	1.5	17.59	17.6
5	2.5	2	3	10.85	10.9
5	1.5	1	4	31.46	31.7
5	2.5	1.5	3	15.13	15.2
6	1.5	3	4	5.79	5.79
6	0.5	0.5	1.5	21.56	21.6
6	0.5	1.5	3.5	25.27	25.4

За сваки од случајева, излазни критеријум је био 10^4 успешних симулација, тако да је релативна стандардна грешка 1 %. Очигледно је да постоји добро слагање између резултата добијених Монте Карло методом и аналитичким приступом (сва одступања су у оквиру 1% грешке коју предвиђа Монте Карло метод, мада треба имати у виду да нумеричко решавање интеграла у аналитичком методу такође представља извор одређене непрецизности). Битно је нагласити да Монте Карло метод нуди знатно једноставније решење од аналитичког приступа, дајући приближно исте резултате. Међутим, аналитички приступ пружа боље разумевање разматраног проблема и у одређеним случајевима даје једноставне формуле за израчунавање ефикасности.

9. ПРОГРАМ ЗА ИЗРАЧУНАВАЊЕ КАЛИБРАЦИОНОГ КОЕФИЦИЈЕНТА CR-39 ДЕТЕКТОРА ЗА МЕРЕЊЕ КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНА У ДИФУЗИОНОЈ КОМОРИ

У овом поглављу ће бити представљен софтвер за израчунавање калибрационог коефицијента CR-39 детектора, који је постављен на дно конусне или цилиндричне дифузионе коморе за мерење радона. Представљени софтвер се може искористити за оптимизацију дифузионе коморе, облика и величине детектора, као и комплетног мерног процеса. Софтвер се састоји из два програма, написана у стандардном Fortran 90 програмском језику, али су алгоритми и кодови релативно једноставни, па се лако могу превести и у друге програмске језике. Модел и програм који су описани у овој глави представљају унапређење и даљи развој претходног рада обављеног у групи за Радијациону физику Природно-математичког факултета у Крагујевцу [Nikezić и др, 1992, 1993]. Извршна верзија програма је доступна и може се наћи на адреси:

<http://www.pmf.kg.ac.rs/radijacionafizika/Sensitivity.html>

9.1 Опис компјутерског програма и улазних параметара

9.1.1 Програм QUEST.F90

Први програм који се извршава назван је QUEST (скраћено од енг. question = питање). Овај програм израчунава ефикасну запремину испред тачкастог CR-39 детектора за алфа-честице дате енергије. Ефикасна запремина се дефинише као запремина у којој емитоване алфа-честице могу бити детектоване. Алгоритам овог програма је описан у даљем тексту.

Алфа-честице се емитују са једном од енергија у ланцу распада радона ^{222}Rn (5.49 MeV, 6 MeV или 7.69 MeV), на растојању које је једнако домету алфа-честица у ваздуху, тако да је упадна енергија честица на детектору једнака нули. Затим се растојање, d , између тачке емисије и тачкастог детектора смањује за одређени корак и рачуна се упадна енергија. Компјутерски програми TRACK_TEST.F90 и TRACK_VISION.F90 [Nikezić и Уџ, 2006, 2008] се затим позивају како би се израчунали параметри трага и како би се одредило да ли је траг видљив или не (на основу упадног угла, упадне енергије, услова нагризања и критеријума видљивости). Цео простор испред детектора се систематски испитује, растојање се варира са

кораком мањим од 0.1 mm, док се упадни угао мења са кораком од 1°. Може се подесити да ови кораци буду и мањи, али би то резултирало дужим временом рачунања, без значајног повећања тачности коначног резултата. Смањење енергије алфа-честице у ваздуху, на путу од тачке емисије до детектора, се претходно рачуна коришћењем SRIM 2003 софтвера [Ziegler, 2004] и зависност енергије од растојања је дата у фајлу OUTPUT_A1000.DAT.

Систематским варирањем растојања и углова карактеришу се све тачке испред детектора и одређује се ефикасна запремина. Програм аутоматски варира почетне енергије алфа-честица, 5.49 MeV (^{222}Rn), 6 MeV (^{218}Po) и 7.69 MeV (^{214}Po), и излази се посебно исписују у фајловима EVCR_1.DAT, EVCR_2.DAT и EVCR_3.DAT (скраћено од енг. Effective Volume CR-39) који дају ефективне запремине за сваки појединачни изотоп, респективно. Ови фајлови се састоје од пет колона. Прва колона даје упадни угао у односу на нормалу на површину детектора. Друга колона представља минимално растојање, $r_{\min}$, до тачке у којој алфа-честица мора бити емитована како би дала видљиве трагове (ово растојање такође може бити једнако нули). Честице емитоване на удаљености мањој од $r_{\min}$ неће бити детектоване. Трећа колона представља највеће растојање, $r_{\max}$, са кога се емитоване честице могу детектовати, док честице емитоване са удаљености већих од $r_{\max}$ неће произвести видљиве трагове. Четврта и пета колона дају енергетски опсег детекције тј. најмању и највећу енергију за коју је детекција могућа, док изван овог интервала енергија неће доћи до детекције.

Пре извршавања програма QUEST.F90, улазни параметри морају бити дефинисани у фајлу INPUTCR.DAT следећим редом:

- *време нагризања у сатима*,
- *брзина нагризања неоштећеног детектора*, V_b , за дефинисане услове нагризања, у *микрометрима по часу*,
- *видљивост у микрометрима* – величина најмањег објекта који се може идентификовати као траг (препоручена вредност је 1),
- *број V функције* која одговара CR-39 детектору коришћеном у реалном експерименту.

9.1.2 Дискусија везана за V функцију

У литератури се може наћи више различитих примера одређивања V функције CR-39 детектора за алфа-честице. Неслагања између објављених резултата су вероватно последица коришћења различитих типова CR-39 детектора (направљених од различитих материјала и различитим процесима) у експериментима, као и различитих метода примењених у

мерењима. Одличан критички преглед публикованих V функција недавно су дали Hersmdorf (2009), Hersmdorf и Hunger (2009) и Hermsdorf и Reichelt (2010).

Следеће V функције су уграђене у софтвер:

1. Функција N⁰1 коју су публиковали Durrani и Bull (1987) и Green и др. (1982) има облик:

$$V = 1 + (A_1 e^{-A_2 R'} + A_3 e^{-A_4 R'})(1 - e^{-A_5 R'}) \quad (9.1)$$

где су константе: $A_1 = 11.45$, $A_2 = 0.339 \mu\text{m}^{-1}$, $A_3 = 4$; $A_4 = 0.044 \mu\text{m}^{-1}$ и $A_5 = 0.58 \mu\text{m}^{-1}$, а R' [μm] је резидуални домет.

2. Функцију N⁰2 објавили су Brun и др. (1999) у следећем облику:

$$V = 1 + e^{-A_1 R' + A_4} - e^{-A_2 R' + A_3} + e^{A_3} - e^{A_4} \quad (9.2)$$

са константама: $A_1 = 0.1 \mu\text{m}^{-1}$, $A_2 = 1. \mu\text{m}^{-1}$, $A_3 = 1.27$ и $A_4 = 1$.

3. Функција N⁰3, преузета од Yu и др. (2005), има облик:

$$V = 1 + e^{-A_1 R' + A_2} - e^{-A_3 R' + A_2} \quad (9.3)$$

са вредностима: $A_1 = 0.069 \mu\text{m}^{-1}$, $A_2 = 1.1784$ и $A_3 = 0.6513 \mu\text{m}^{-1}$.

4. Функција N⁰4 има исти облик као и функција N⁰3, али са мало измењеним вредностима коефицијената [Yu и др., 2005a]: $A_1 = 0.06082 \mu\text{m}^{-1}$, $A_2 = 1.119$, $A_3 = 0.8055 \mu\text{m}^{-1}$.

5. Функцију N⁰5 дао је Hersmdorf (2009) и она има облик:

$$V = 1 + \frac{A_1}{(R' + A_2)^{A_3}} \ln(R' + A_4) \cdot (1 - e^{-R'/A_5}) + \frac{R'}{A_5} \quad (9.4)$$

где су константе $A_1 = 390$, $A_2 = 2 \mu\text{m}$, $A_3 = 2.35$, $A_4 = 1 \mu\text{m}$, $A_5 = 5 \mu\text{m}$ и $A_6 = 80 \mu\text{m}$.

Корисник може изабрати било коју од ових функција простим мењањем последњег броја, од 1 до 5, у фајлу INPUTCR.DAT.

Програм се извршава за 20 - 30 min (зависно од рачунара) и није потребно извршавати га поново све док параметри (време нагризања, брзина нагризања неоштећеног детектора и критеријум видљивости) дефинисани у INPUTCR.DAT остају непромењени.

9.1.3 Рачунање калибрационог коефицијента

Постоје три различита извора која дају допринос укупној густини трагова на детектору: (а) радон и потомци у ваздуху коморе (запреминска фракција), (б) потомци наталожени на зидовима коморе, укључујући и филтер који се налази наспрам детектора (зидна фракција) и (в) потомци наталожени на самом детектору ("*plate out*"). Направљена су три различита потпрограма, по један за сваки од ова три извора. Они се позивају редом, из главног програма који носи назив SENSITIVITY.F90.

Да би се израчунао калибрациони коефицијент детектора, неопходни су подаци о комори и димензијама детектора. Улазне параметре је потребно дефинисати пре извршења програма SENSITIVITY.F90. Они су дати у фајлу INPUTCHAMBER.DAT. Први параметар је број регистрованих алфа-честица (на пример, 10^4 даје релативну стандардну грешку од 1%). С обзиром да ови прорачуни не трају дуго, корисник може повећати број регистрованих честица. У другом реду се дефинишу димензије конусне коморе: доњи полупречник, R_1 , горњи полупречник, R_2 , и висина, H , све у *cm*. С обзиром да је комора конусна, R_1 мора бити мање од R_2 тј. $R_1 \leq R_2$ (за случај цилиндричне коморе ће бити $R_1 = R_2$). Програм неће радити ако је R_1 веће од R_2 или ће радити погрешно. Корисник може променити било који од ових параметара.

Због једноставности, претпостављено је да је детектор кружног облика, мада се CR-39 детектори таквог облика ретко користе у експериментима. Корисник би требало да израчуна полупречник круга који има исту површину као детектор који се реално користи у експерименту и који је најчешће правоугаоног облика.

9.1.4 Потпрограм CHAMBER_VOLUME.F90

Након што је одређена ефикасна запремина, врши се рачунање парцијалних калибрационих коефицијената за сваки појединачни потомак. Потпрограм CHAMBER_VOLUME.F90 рачуна калибрациони коефицијент детектора CR-39 који се налази на дну конусне (или цилиндричне) дифузионе коморе, претпостављајући да су алфа-емитери распоређени у запремини коморе. Програм рачуна парцијалне калибрационе коефицијенте за радон и потомке, узимајући у обзир претходно задате услове нагризања и читавања. Овај програм се извршава три пута тј. за сваку од енергија алфа-честица емитованих у ланцу распада радона. Резултати се дају у Међународном систему јединица (*y m*) и у *track/cm²* по *Bq day/m³*. Они се штампају на екрану и исписују у посебном фајлу под називом OUTPUT.DAT.

9.1.5 Потпрограм *CHAMBER_WALL.F90*

Део радонових потомака се наталожи на унутрашњим зидовима коморе пре емисије алфа/бета-честица. Геометрија озрачивања се разликује у односу на претходни случај, па се користи посебан потпрограм који се такође позива из програма *SENSITIVITY.F90*. Потпрограм *CHAMBER_WALL.F90* рачуна парцијалне калибрационе коефицијенте детектора за радонове потомке наталожене на унутрашњем зиду коморе. Улазни параметри су исти као и у претходном случају и учитавају се из фајла *INPUTCHAMBER.DAT*. Овај потпрограм се извршава два пута, први пут за енергију од 6 MeV (^{218}Po) и други пут за 7.69 MeV (^{214}Po), са одговарајућим улазним фајловима *EVCR_2.DAT* и *EVCR_3.DAT*. Излазни резултат су парцијални калибрациони коефицијенти за потомке, изражени у Међународном систему јединица (m) и у track/cm^2 по $\text{Bq day}/\text{m}^3$. Прорачуни се врше под претпоставком да су радонови потомци равномерно распоређени по унутрашњем зиду коморе. Ова претпоставка можда не одговара реалности, али не постоји довољно експерименталних података на ову тему. Мада неки теоријски радови тврде да таложење потомака није равномерно [Palacios и др., 2005; Nikezic и Stevanovic, 2005; Pressyanov, 2008], ово није узето у обзир у потпрограму *CHAMBER_WALL.F90*. Излазни резултати се штампају на екрану и исписују се у фајлу *OUTPUT.DAT*.

9.1.6 Потпрограм *CHAMBER_PLATE.F90*

Неки од радонових потомака се таложе на самом детектору. Ова појава се назива "*plate out*". Потомци су у контакту са површином детектора и геометрија озрачивања је 2π . Међутим, због постојања критичног угла, ефикасност детекције је мања од 50% и такође зависи од услова нагризања и поступка очитавања трагова. Потпрограм *CHAMBER_PLATE.F90* рачуна калибрационе коефицијенте за потомке наталожене на детектору. Он такође користи исте улазне параметре из фајла *INPUTCHAMBER.DAT*. Овај потпрограм се извршава два пута, са енергијама 6 MeV (^{218}Po) и 7.69 MeV (^{214}Po), користећи одговарајуће ефикасне запремине и улазне датотеке *EVCR_2.DAT* и *EVCR_3.DAT*. Претпостављено је да су потомци равномерно распоређени на површини детектора. Резултати се такође дају у m и у track/cm^2 по $\text{Bq day}/\text{m}^3$. Штампају се на екрану и исписују у истом фајлу као и претходни.

9.2 Коначни резултати

Као резултат претходних прорачуна, добијају се следећи резултати који се исписују у фајлу OUTPUT.DAT:

- k_0 – парцијални калибрациони коефицијент за ^{222}Rn у запремини коморе;
- k_{1a} – калибрациони коефицијент за ^{218}Po у запремини коморе тј. у ваздуху;
- k_{4a} – калибрациони коефицијент за ^{214}Po у запремини коморе тј. у ваздуху;
- k_{1w} – калибрациони коефицијент за ^{218}Po наталожен на зидовима коморе;
- k_{4w} – калибрациони коефицијент за ^{214}Po наталожен на зидовима коморе;
- k_{1p} – калибрациони коефицијент за ^{218}Po наталожен на самом детектору;
- k_{4p} – калибрациони коефицијент за ^{214}Po наталожен на самом детектору (*plate out*).

Укупни калибрациони коефицијент се рачуна на следећи начин:

$$k_{tot} = k_0 + f_1 k_{1a} + f_4 k_{4a} + (1 - f_1) k_{1w} + (1 - f_4) k_{4w} + k_{1p} + k_{4p} \quad (9.5)$$

где су:

- f_1 – фракција ^{218}Po који се распадне у ваздуху;
- f_4 – фракција ^{214}Po који се распадне у ваздуху.

Овде постоје два гранична случаја: (а) сви радонови потомци се распадају у запремини коморе (тј. у ваздуху), пре таложења, где је $f_1 = f_4 = 1$ и (б) сви потомци се таложе пре распада, $f_1 = f_4 = 0$. Калибрациони коефицијент се израчунава за оба гранична случаја, док је стварна вредност негде између ове две вредности. Може се претпоставити да се ^{214}Po распада као потпуно наталожен, $f_4 = 0$, док f_1 има вредност између 0 и 1. Овај случај је такође програмиран, али корисник мора преко тастатуре задати улазну вредност за f_1 .

9.2.1 Поређење са експерименталним подацима

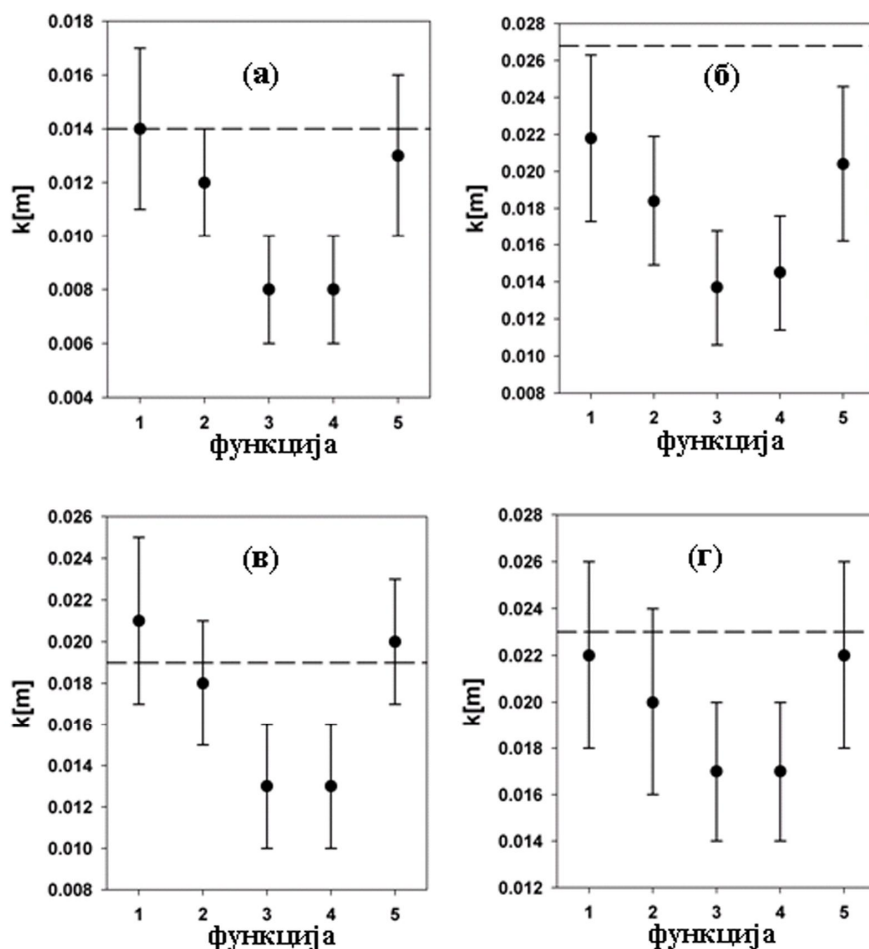
У литератури се може наћи велики број експерименталних радова у којима аутори дају калибрационе коефицијенте за мерење концентрације радона помоћу CR-39 детектора. Међутим, неки од података који се користе као улазни параметри у описаном програму углавном нису доступни. На пример, дебљина уклоњеног слоја често није дата или уопште није контролисана. У неким радовима нема прецизних података о условима нагризања и димензијама коморе. Ипак, за поређење је одабрано неколико референци које су представљене у Табели 9.1, заједно са подацима о коморама и условима нагризања које су аутори користили.

Табела 9.1 Неке од вредности експериментално добијених калибрационих коефицијената, пронађених у литератури

Референца	Облик и димензије коморе	Димензије детектора	Услови нагризања	k [m] експериментално
Mahlobo и Farid (1992)	Конусна комора: $R_1=2.7\text{cm}$ $R_2=3.4\text{cm}$ $H=9.5\text{cm}$	$2.5 \times 2.5\text{cm}^2$ $R_D \approx 1.41\text{cm}$	6M NaOH, 70°C, 12h	0.023
Garawi (1996)	Конусна комора $R_1=3.4\text{cm}$ $R_2=3.85\text{cm}$ $H=4.7\text{cm}$	Није дато ($R_D \approx 1\text{cm}$, процењено са Слике2)	6M NaOH, 70°C, 2.5h	0.014
Antovic и др. (2007)	Конусна комора $R_1=2.4\text{cm}$ $R_2=3.4\text{cm}$ $H=5.3\text{cm}$	$R_D=1.775\text{cm}$	6.25M NaOH, 70°C, 7h	0.019
Ismail и Jaafar (2011)	Цилиндрична комора $R_1=R_2=3\text{cm}$ $H=7\text{cm}$	$1 \times 1.5\text{cm}^2$ $R_D \approx 0.69\text{cm}$	6M NaOH, 70°C, 9h	0.027

Као што је већ поменуто, у експериментима је уобичајено коришћење правоугаоних детектора, док програм разматра детектор кружног облика. Из тог разлога су за прорачуне коришћене димензије детектора кружног облика које дају површине једнаке површинама детектора који су коришћени у реалним експериментима. С обзиром да дебљина уклоњеног слоја није дата у овим радовима, она је процењена на основу услова нагризања, узимајући за брзину нагризања неоштећеног детектора $V_b = 1.2 \text{ } \mu\text{m/h}$, што одговара нагризању у 6M раствору NaOH на 70°C [Yu и др., 2005]. Осим тога, експериментални резултати су дати у различитим јединицама, па је било неопходно превести их у исту јединицу [m] како би се олакшало поређење.

Поређење између експеримената и прорачуна је представљено на Слици 9.1 (а-г). Пет различитих V функција је коришћено у свим случајевима и њихови бројеви су приказани на апсциси. С обзиром да осетљивост детектора зависи од запреминске фракције изотопа ^{218}Po , за сваки од датих услова вршено је три прорачуна, узимајући вредности $f_1 = 1, 0.5$ и 0 . Резултати које програм даје за $f_1 = 0.5$ су представљени пуним круговима; горње границе опсега неодређености добијене су за $f_1 = 1$, а доње границе одговарају запреминској фракцији $f_1 = 0$. Експериментални резултати су приказани испрекиданим хоризонталним линијама.



Слика 9.1 Поређење експерименталних вредности калибрационих коефицијената са резултатима које програм даје за пет различитих V функција. Пуни кругови (●) представљају резултате програма; испрекидане линије (— —) представљају експерименталне вредности које су дали аутори: а) Garawi; б) Ismail u Jaafar; в) Antovic u др.; г) Mahlobo u Farid

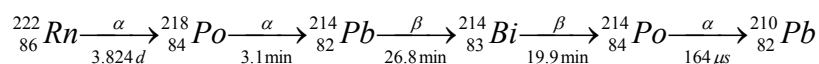
Слика 9.1 показује да функције бр. 3 и 4 дају најниже вредности, доста ниже од експерименталних резултата, док су функције 1 и 5 у добром слагању са резултатима које су објавили аутори Mahlobo и Farid (1992), Garawi (1996) и Antovic и др. (2007). Коефицијент који су дали Ismail и Jaafar (2011) је доста изнад израчунатих вредности.

10. АНАЛИЗА МЕРЕЊА КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНОВИХ И ТОРОНОВИХ ПОТОМАКА У ВАЗДУХУ МЕТОДОМ ФИЛТРИРАЊА

Краткоживећи продукти радиоактивног распада радона (^{222}Rn) и торона (^{220}Rn) у ваздуху се, након удисања, могу акумулирати у плућима и озрачивати осетљива ткива. Методе мерења њихових концентрација у атмосфери се углавном заснивају на филтрирању ваздуха кроз одговарајуће филтере, након чега следе мерења алфа, бета или гама-активности. У одсуству торона (^{220}Rn), одброји се могу мерити током три временска интервала, на основу чега је, применом одговарајућих једначина, могуће одредити концентрације краткоживећих радонових потомка у ваздуху. Уколико се присуство торона не може занемарити, потребно је пет мерних интервала за истовремено одређивање концентрација радонових и торонових потомака. Међутим, током практичне реализације ове методе мерења, често се добијају физички неприхватљиви резултати као што су: негативне концентрације неких потомака, нереално високе или нереално ниске концентрације, концентрације потомка које су драстично веће од концентрација одговарајућих претходника итд. Из тог разлога, извршена је анализа ове методе у циљу бољег разумевања узрока оваквог понашања, а такође су и предложене неке нове методе.

10.1 Одсуство торона и његових потомака

Шема распада радона, ^{222}Rn , је приказана испод, при чему је, због мале вероватноће, занемарено гранање низа при распаду ^{214}Bi . Због кратког времена полураспада, може се сматрати да је ^{214}Po у радиоактивној равнотежи са својим претходником, ^{214}Bi . ^{218}Po и ^{214}Po су алфа-емитери, док ^{214}Pb и ^{214}Bi при распаду емитују бета-честице.



10.1.1 Директно одређивање РАЕС-а

Нека су n_1 , n_2 и n_3 бројеви атома ^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi , респективно, у јединичној запремини ваздуха који се усисава кроз филтер. Уколико се брзина филтрирања означи са

$v(\text{m}^3\text{s}^{-1})$ а ефикасност филтера са η , пораст броја атома ^{218}Po (N_1), ^{214}Pb (N_2) и ^{214}Bi (N_3) на филтеру, током филтрирања, се може описати следећим скупом једначина:

$$\frac{dN_1}{dt} = n_1 v \eta - \lambda_1 N_1 \quad (10.1)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = n_2 v \eta + \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (10.2)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = n_3 v \eta + \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \quad (10.3)$$

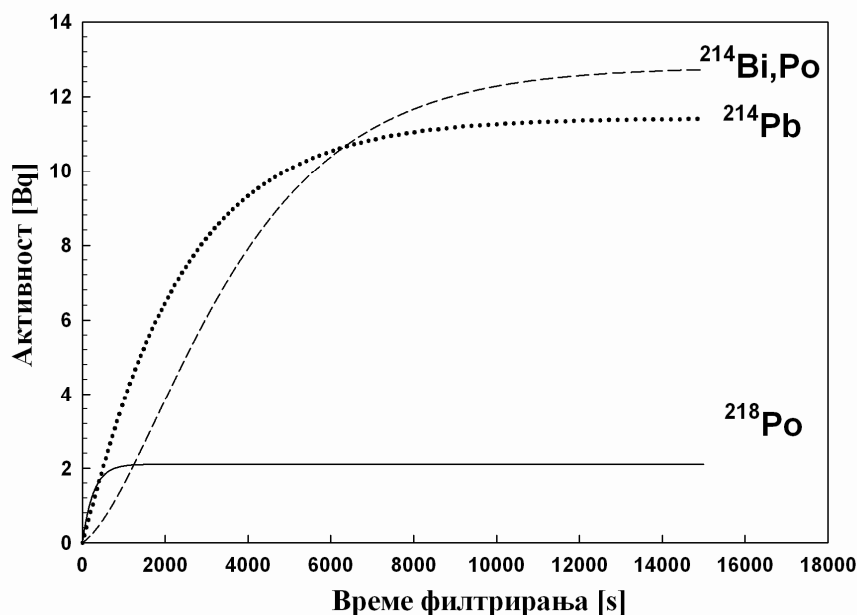
где су λ_1 , λ_2 и λ_3 константе радиоактивног распада ^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi , респективно. Под претпоставком да у почетном тренутку филтрирања није било атома потомака на филтеру тј. $N_1(0) = N_2(0) = N_3(0) = 0$, добијају се следећа решења претходних диференцијалних једначина:

$$N_1(t) = \frac{v\eta}{\lambda_1} n_1 [1 - \exp(-\lambda_1 t)] \quad (10.4)$$

$$N_2(t) = \frac{v\eta}{\lambda_2} \left\{ n_1 \left[1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \exp(-\lambda_1 t) + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \exp(-\lambda_2 t) \right] + n_2 [1 - \exp(-\lambda_2 t)] \right\} \quad (10.5)$$

$$N_3(t) = \frac{v\eta}{\lambda_3} \left\{ n_1 \left[1 - \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_1 - \lambda_3)} \exp(-\lambda_1 t) + \frac{\lambda_1 \lambda_3}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_2 - \lambda_3)} \exp(-\lambda_2 t) - \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \exp(-\lambda_3 t) \right] + n_2 \left[1 + \frac{\lambda_3}{\lambda_2 - \lambda_3} \exp(-\lambda_2 t) - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_3} \exp(-\lambda_3 t) \right] + n_3 [1 - \exp(-\lambda_3 t)] \right\} \quad (10.6)$$

На основу ових једначина добијена је Слика 10.1 која илуструје промену активности радонових потомака на филтеру за време филтрирања. Резултати су добијени под претпоставком да су активности ^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi у ваздуху 50, 25 и 5 Bq m^{-3} , респективно.



Слика 10.1 Пораст активности радонових потомака на филтеру током филтрирања. Претпостављене су вредности: $\eta = 0.8$; $v = 0.2$ l/s

Може се приметити да за дуго време филтрирања, $t \rightarrow \infty$, све три вредности, N_1 , N_2 и N_3 , достижу сатурацију:

$$N_1(\infty) = \frac{v\eta}{\lambda_1} n_1 \quad (10.7)$$

$$N_2(\infty) = \frac{v\eta}{\lambda_2} (n_1 + n_2) \quad (10.8)$$

$$N_3(\infty) = \frac{v\eta}{\lambda_3} (n_1 + n_2 + n_3) \quad (10.9)$$

Укупна алфа-активност са филтера у тренутку престанка филтрирања (у сатурационом режиму) дата је са:

$$A_\alpha = N_1(\infty) \cdot \lambda_1 + N_3(\infty) \cdot \lambda_3 = v\eta(2n_1 + n_2 + n_3) \quad (10.10)$$

Концентрација енергије алфа честица радонових потомака ($PAEC_{Rn}$ – Potential Alpha Energy Concentration), која је дефинисана као сума енергија алфа-честица свих краткоживећих радонових потомака у јединици запремине ваздуха, дата је са:

$$PAEC_{Rn} = E_1 n_1 + E_2 n_2 + E_3 n_3 \quad (10.11)$$

где $E_{1,2,3}$ представља енергије алфа-честица ($E_1 = 13.69 \text{ MeV}$, $E_2 = E_3 = 7.69 \text{ MeV}$). Дакле, $PAEC_{Rn}$ је:

$$PAEC_{Rn} = 13.69 \cdot n_1 + 7.69 \cdot (n_2 + n_3) \quad (10.12)$$

Ако се искористи количник $13.69 / 7.69 = 1.78 \approx 2$, сличност између формула за A_α и $PAEC_{Rn}$ постаје очигледна. Може се рећи да постоји линеарна веза између величине $PAEC_{Rn}$ у ваздуху и укупне алфа-активности на филтеру у сатурационом режиму:

$$PAEC_{Rn} = 7.69 \cdot \left(\frac{13.69}{7.69} n_1 + n_2 + n_3 \right) = 7.69 \cdot (1.78 \cdot n_1 + n_2 + n_3) \quad (10.13)$$

На основу једначине (10.10) важи:

$$2n_1 + n_2 + n_3 = \frac{A_\alpha}{v\eta} \quad (10.14)$$

Дакле, приближно се може узети:

$$PAEC_{Rn} = 7.69 \cdot (1.78 \cdot n_1 + n_2 + n_3) \cong 7.69 \cdot \frac{A_\alpha}{v\eta} \quad (10.15)$$

Једначина (10.15) се може искористити за брзу процену вредности $PAEC_{Rn}$ -а у ваздуху, са грешком мањом од 15 %. $PAEC_{Rn}$ је величина која се користи за одређивање ефективне дозе у плућима од радонових потомака. Једначина (10.15) даје $PAEC_{Rn}$ у $\text{MeV} \cdot \text{m}^{-3}$. Средњи $PAEC$ (изражен у WL) множи се са временом излагања ($M = 170 \text{ h}$) и даје вредност укупног излагања радоновим потомцима, које се даље множи са дозним конверзионим фактором DCF (у mSv/WLM) да би се добила ефективна доза. DCF се дефинише као ефективна доза (у mSv) по јединичном излагању (у WLM).

10.1.2 Распадање потомака на филтеру након престанка филтрирања

Након престанка филтрирања, радонови потомци се распадају на филтеру. Промена броја атома ^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi , описана је скупом диференцијалних једначина:

$$\frac{dN_1'}{dt'} = -\lambda_1 N_1' \quad (10.16)$$

$$\frac{dN_2'}{dt'} = \lambda_1 N_1' - \lambda_2 N_2' \quad (10.17)$$

$$\frac{dN_3'}{dt'} = \lambda_2 N_2' - \lambda_3 N_3' \quad (10.18)$$

Решења једначина су:

$$N_1'(t') = N_{10} \exp(-\lambda_1 t') \quad (10.19)$$

$$N_2'(t') = N_{10} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} [\exp(-\lambda_1 t') - \exp(-\lambda_2 t')] + N_{20} \exp(-\lambda_2 t') \quad (10.20)$$

$$N_3'(t') = N_{10} \left[\frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_1 - \lambda_3)} \exp(-\lambda_1 t') + \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_3)} \exp(-\lambda_2 t') + \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \exp(-\lambda_3 t') \right] + N_{20} \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_3} [\exp(-\lambda_3 t') - \exp(-\lambda_2 t')] + N_{30} \exp(-\lambda_3 t') \quad (10.21)$$

где су N_{10} , N_{20} , N_{30} бројеви атома потомака на филтеру у тренутку престанка филтрирања.

Као што је већ поменуто, концентрације радонових потомака добијене овом методом често могу имати нереалне и физички неприхватљиве вредности. Како би се испитао овај проблем, извршен је симулациони експеримент. Претпостављене су следеће реалне вредности активносних концентрација радонових потомака у ваздуху:

$$A(^{218}\text{Po}) = A_1 = 50 \text{ Bq m}^{-3}$$

$$A(^{214}\text{Pb}) = A_2 = 25 \text{ Bq m}^{-3}$$

$$A(^{214}\text{Bi}, \text{Po}) = A_3 = 5 \text{ Bq m}^{-3}$$

На основу задатих концентрација и једначина (10.4) – (10.6) и (10.19) – (10.21), направљен је једноставан Фортрански програм који предвиђа одброје који би се детектовали током три мерења алфа активности са филтера, након престанка филтрирања. Претпостављене су вредности мерних параметара:

- ефикасност филтера $\eta = 0.8$
- брзина филтрирања $\nu = 0.2 \text{ l/s}$
- ефикасност алфа бројања $\varepsilon = 0.1$.

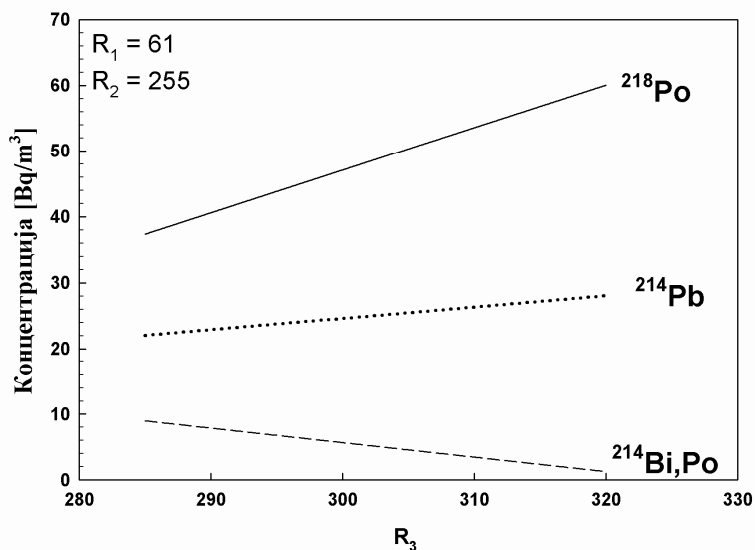
Трајање филтрирања је подешено на 20 минута (недовољно да би се постигла сатурација, осим за ^{218}Po), а временски интервали мерења алфа активности са филтера су: 60-240 s; 300-1200 s; 1260-2400 s, рачунато од тренутка престанка филтрирања. Ови интервали мерења и филтрирања одговарају интервалима који се у литератури углавном помињу као оптимални [Chunxiang и Daling, 1983; Islam и Haque, 1994]. За претходно задате вредности добијени су следећи одброји: $R_1 = 61$; $R_2 = 255$ и $R_3 = 303$ (резултати су представљени као цели бројеви иако програм даје децималне вредности).

Још један програм је направљен са циљем израчунавања концентрације радонових потомака у ваздуху на основу задатих алфа-одброја детектованих током три мерна интервала. Претходно добијени резултати одброја, R_1 , R_2 и R_3 , се сада користе као улазни параметри, а концентрације потомака које програм даје на излазу се добро слажу са вредностима које су на почетку претпостављене. Ово слагање потврђује да програми раде коректно и да је метод заиста функционалан.

Познато је да је број импулса, R , који се добија као одговор детекторског система, статистичка величина. На основу статистике, вероватноћа добијања броја импулса у интервалу $\bar{R} \pm 1\sigma$ је 66 %, где је σ стандардна девијација. У радијационим мерењима се за стандардну девијацију мерења R одброја узима $\sqrt{R}$. За претходно поменуте одброје, $R_1 = 61$; $R_2 = 255$ и $R_3 = 303$ (добијене прорачунима), стандардне девијације су 8, 16 и 17, респективно.

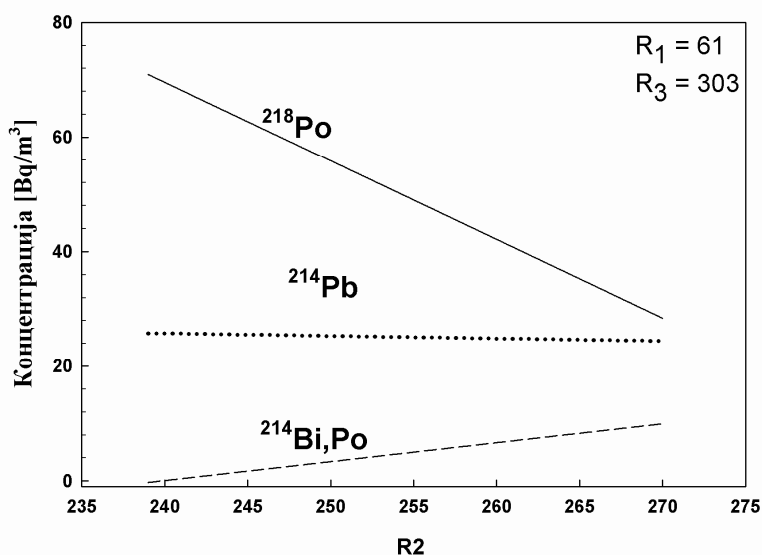
Следећи корак било је варирање одброја R_1 , R_2 и R_3 у оквиру стандардних девијација тј. у границама: $R_1 = 53 - 69$, $R_2 = 239 - 270$ и $R_3 = 285 - 320$. Вероватноћа добијања било ког одброја из ових интервала је 66 %. Затим су рачунате концентрације потомака у ваздуху, A_1 , A_2 и A_3 , за различите комбинације одброја из ових интервала.

Резултати су представљени на Сликама 10.2 – 10.4. Два од три одброја имају константне вредности $R_1 = 61$; $R_2 = 255$ или $R_3 = 303$, док се трећи одброј варира у границама своје стандардне девијације.



Слика 10.2 Концентрације радонских потомака добијене варирањем одброја R_3 у интервалу од 285 до 320, док су вредности преостала два одброја: $R_1 = 61$ и $R_2 = 255$

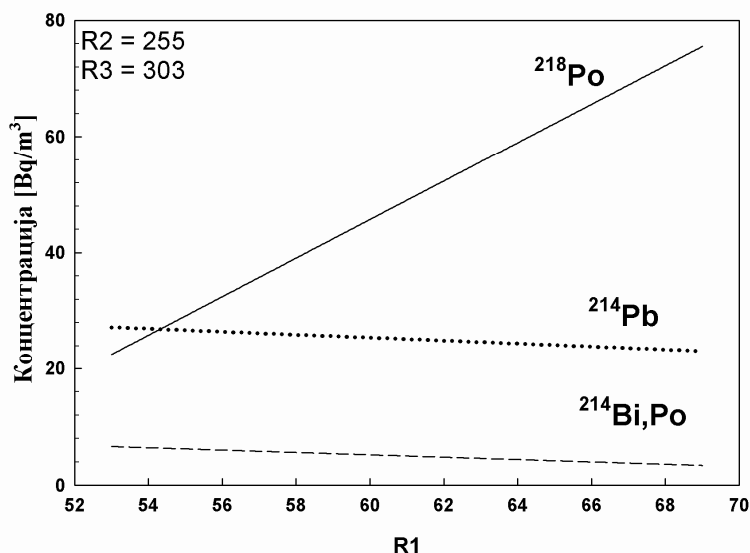
Слика 10.2 приказује промене добијених вредности концентрација радонских потомака у ваздуху при варирању одброја у трећем интервалу, R_3 , у одговарајућим границама. Очигледно је концентрација ^{218}Po веома осетљива на промене одброја R_3 и креће се од 37 Bq m^{-3} до 60 Bq m^{-3} . Концентрација ^{214}Pb је мање осетљива и мења се од 22 Bq m^{-3} до 28 Bq m^{-3} , док концентрација $^{214}\text{Bi, Po}$ опада од 9 Bq m^{-3} до 1 Bq m^{-3} .



Слика 10.3 Промена добијених вредности концентрација потомака при варирању одброја измерених у другом интервалу, R_2

Слика 10.3 приказује ефекат промене одброја R_2 . Концентрација ^{218}Po је поново веома осетљива на ове промене и вредности јој опадају од 71 Bq m^{-3} до 28 Bq m^{-3} , док

концентрација ^{214}Pb остаје скоро константна. Концентрације $^{214}\text{Bi, Po}$ расту од -0.3 до 10 Bq m^{-3} . Првих неколико добијених вредности су чак и негативне, што је физички неприхватљиво.



Слика 10.4 Концентрације потомака добијене варирањем одброја R_1 у интервалу од 53 до 69

Варирање одброја R_1 у границама стандардне девијације приказано је на Слици 10.4. Концентрација ^{218}Po расте од 22 Bq m^{-3} до 75 Bq m^{-3} . Концентрација ^{214}Pb благо опада од 27 Bq m^{-3} до 23 Bq m^{-3} док концентрације $^{214}\text{Bi, Po}$ опадају од 7 Bq m^{-3} до 3 Bq m^{-3} .

Претходни пример, добијен коришћењем реалних вредности концентрација радонових потомака и мерних параметара, показује да је систем веома осетљив на варијације броја детектованих алфа-импулса. Мале промене у добијеним одбројима, које су потпуно могуће при реалним мерењима, могу изазвати велике грешке при одређивању концентрација ^{218}Po и $^{214}\text{Bi, Po}$ у ваздуху. Концентрација ^{214}Pb је мање осетљива на ове варијације, али се такође мења у одређеној мери. Велика осетљивост решења на промене одброја може бити значајан недостататак ове методе.

У општем случају, систем једначина на коме се метода заснива може се представити у матричном облику:

$$\begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \\ A_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} z_{11} & z_{12} & z_{13} \\ z_{21} & z_{22} & z_{23} \\ z_{31} & z_{32} & z_{33} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} R_1 \\ R_2 \\ R_3 \end{bmatrix} \quad (10.22)$$

где су A_1, A_2, A_3 активносне концентрације радонових потомака у ваздуху, z_{ij} ($i = 1,2,3; j = 1,2,3$) су функције времена и константи радиоактивног распада, а R_i су одброји добијени током три мерна интервала. Елементи z_{ij} се могу добити на основу једначина (10.19) - (10.21).

Један од могућих разлога нестабилности система може бити и велика вредност детерминанте система датог једначином (10.22). Вредност детерминанте је проверена за различите комбинације временских интервала мерења алфа-активности са филтера. Први мерни интервал почиње 1 минут након престанка филтрирања. Трајање првог интервала је варирано између 4 и 10 минута, са кораком од 1 min. Други интервал мерења почиње 1 min након завршетка првог, а његово трајање се варира од 4 до 60 min. Последњи интервал траје од 4 до 120 минута, а почиње 1 min након престанка другог мерења. Ово је приказано у Табели 10.1.

Табела 10.1 Варирање мерних интервала за које су рачунате детерминанте

Први интервал		Други интервал		Трећи интервал	
Почетак ₁ [min]	Трајање ₁ [min]	Почетак ₂ [min]	Трајање ₂ [min]	Почетак ₃ [min]	Трајање ₃ [min]
1	4-10	Почетак ₁ +Трајање ₁ +1	4-60	Почетак ₂ +Трајање ₂ +1	4-120

У свим случајевима, добијене детерминанте су негативне. Тестирано је укупно 40676 различитих комбинација временских интервала и у већини случајева су вредности детерминанти биле мале и блиске нули. Међутим, у појединим случајевима су добијене и нешто веће вредности и ти случајеви су приказани у Табели 10.2.

Табела 10.2 Интервали мерења који су дали највеће вредности детерминанти (границе интервала су дате у min, мерено од тренутка престанка филтрирања)

Први интервал		Други интервал		Трећи интервал		Детерминанта
Почетак ₁	Крај ₁	Почетак ₂	Крај ₂	Почетак ₃	Крај ₃	
1	5	6	10	11	15	-4.292
1	5	6	11	12	16	-2.992
1	6	7	11	12	16	-3.595
1	7	8	12	13	17	-3.164
1	8	9	13	14	18	-2.883
1	9	10	14	15	19	-2.698
1	10	11	15	16	20	-2.577

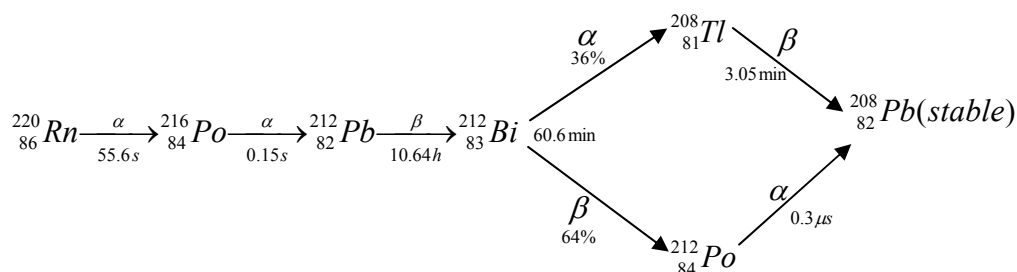
Осим што поменуте комбинације дају највеће апсолутне вредности детерминанти, очигледно је да сви поменути интервали мерења трају релативно кратко, па ће и бројеви импулса детектовани у овим интервалима бити мали. Ово ће узроковати и велику

статистичку грешку. Дакле, при одређивању оптималних мерних интервала било би пожељно размотрити и вредности детерминанте система.

Претходна дискусија је заснована на претпоставци да су радон и његови потомци једини алфа-емитери присутни у ваздуху тј. претпостављено је да су концентрације торона (^{220}Rn) и његових потомака занемарљиве. У случајевима када се концентрације торонових потомака у ваздуху не могу занемарити, њихов допринос укупној алфа (или бета) активности се такође мора узети у обзир.

10.2 Присуство торона у ваздуху

Шема распада торона (^{220}Rn) се може приказати на следећи начин:



Еквивалентна равнотежна концентрација торона (ЕЕТС) је дата формулом:

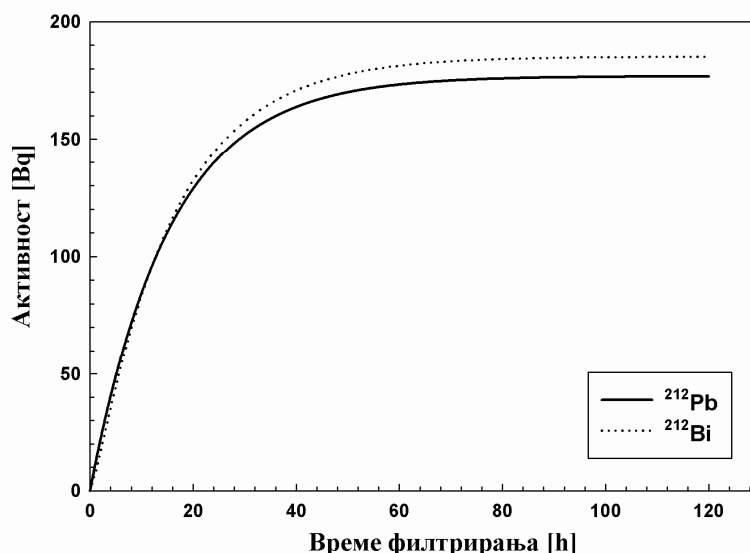
$$EETC = 0.913 \cdot A_4 + 0.087 \cdot A_5 \quad (10.23)$$

где су A_4 и A_5 активносне концентрације ^{212}Pb и ^{212}Bi у Bq m^{-3} . $PAEC_{\text{Th}}$ се може изразити као:

$$PAEC_{\text{Th}} \cong 7.8(n_4 + n_5) \quad (10.24)$$

где n_4, n_5 представљају бројеве атома ^{212}Pb и ^{212}Bi у m^3 ваздуха, респективно. Први потомак торона, ^{216}Po , је изостављен из претходних једначина због кратког времена полураспада. Његов допринос величинама $PAEC_{\text{Th}}$ и $EETC_{\text{Th}}$ је веома мали и може се занемарити. Осим тога, ^{216}Po који се накупи на филтеру распада се веома брзо и не може се детектовати у разматраним временским интервалима.

Пораст активности торонових потомака на филтеру за време филтрирања се разликује од активности радонових потомака, због различитих периода полураспада. Као пример, дат је график на Слици 10.5. Резултати су добијени за следеће услове: за активносне концентрације ^{212}Pb и ^{212}Bi у ваздуху су узете вредности 20 Bq m^{-3} и 10 Bq m^{-3} , респективно, док су вредности параметара филтрирања (брзина филтрирања и ефикасност филтера) исте као и у претходном случају.



Слика 10.5 Пораст активности торонових потомака на филтеру за време филтрирања. Претпостављене концентрације ^{212}Pb и ^{212}Bi у ваздуху су $A_4 = 20 \text{ Bq m}^{-3}$ и $A_5 = 10 \text{ Bq m}^{-3}$

Време потребно да би се достигла сатурација је много дуже него у случају радонових потомака и износи приближно 3 дана. Ово је очекивано с обзиром да ^{212}Pb има време полураспада 10.64 h. Активности ^{212}Bi и ^{212}Pb на филтеру су приближно једнаке, што значи да је на филтеру постигнута равнотежа. Нумерички експеримент је изведен и са другачијим вредностима концентрација ^{212}Bi и ^{212}Pb , (на пример: 200 Bq m^{-3} и 1 Bq m^{-3}) и добијени су слични резултати.

Сатурациона активност на филтеру носи информацију о величинама РАЕС_{Th} и ЕЕТС_{Th} . Први члан је доминантан у изразу за ЕЕТС_{Th} . Сатурација активности оба потомка се постиже истовремено и активности су приближно једнаке. Активност ^{212}Pb расте на филтеру по формули:

$$A_4 = n_4 \eta \nu (1 - e^{-\lambda_4 t}) \quad (10.25)$$

За дуго време филтрирања ($t \approx 3$ дана), $A_4 = n_4 \eta \nu$, где је n_4 број атома у m^3 филтрираног ваздуха. Дакле, мерењем активности потомака на филтеру, $A_4 = A_5$, у тренутку

престанка филтрирања, могу се одредити број атома потомака у m^3 ваздуха, $РАЕС_{Th}$ и $ЕЕТС_{Th}$.

Проблем који се овде јавља је чињеница да је укупна активност са филтера заправо збир активности радонових и торонових потомака у тренутку престанка филтрирања. Да би се одредили $РАЕС$ и $ЕЕТС$ за торон, потребно је чекати најмање 3 h након престанка филтрирања. Током тог периода, сви радонови потомци ће се потпуно распасти и на филтеру ће остати само торонови потомци.

Распадање торонових потомака на филтеру, након престанка филтрирања, дато је следећим формулама:

$$N_4'(t') = N_{40} \exp(-\lambda_4 t') \quad (10.26)$$

$$N_5'(t') = N_{40} \frac{\lambda_4}{\lambda_5 - \lambda_4} [\exp(-\lambda_4 t') - \exp(-\lambda_5 t')] + N_{50} \exp(-\lambda_5 t') \quad (10.27)$$

N_{40} и N_{50} су бројеви атома ^{212}Pb и ^{212}Bi на филтеру у тренутку престанка филтрирања, а t' је протекло време. С обзиром да је неопходно чекати више од 3 h за одређивање $ЕЕТС_{Th}$, N_{40} и N_{50} се након тога могу одредити помоћу једноставне трансформације претходних једначина:

$$N_{40} = N_4'(t') \exp(\lambda_4 t') \quad (10.28)$$

$$N_{50} = N_5'(t') \exp(\lambda_5 t') - N_{40} \frac{\lambda_4 \exp(\lambda_5 t')}{\lambda_5 - \lambda_4} [\exp(-\lambda_4 t') - \exp(-\lambda_5 t')] \quad (10.29)$$

Активности ^{212}Pb и ^{212}Bi у тренутку престанка филтрирања дате су са:

$$A_{40} = N_{40} \lambda_4, \quad A_{50} = N_{50} \lambda_5. \quad (10.30)$$

Битно је приметити да је ^{212}Pb бета емитер и може се мерити бета бројачима (нема потребе за алфа-спектрометријом или алфа-бројачима), што може бити једноставније од алфа-мерења. При бета мерењима мора се имати у виду да бета-честице емитују и ^{212}Pb и ^{212}Bi (као и његов потомак, ^{208}Tl).

10.2.1 Осетљивост израчунатих активности ^{212}Pb и ^{212}Bi на промене броја детектованих алфа-импулса

Изведен је нумерички експеримент са претпостављеним концентрацијама радонових потомака: 50 Bq m^{-3} , 25 Bq m^{-3} и 5 Bq m^{-3} за ^{218}Po , ^{214}Pb и ^{214}Bi ; и концентрацијама торонових потомака: 20 Bq m^{-3} и 5 Bq m^{-3} за ^{212}Pb и ^{212}Bi , респективно. С обзиром да овде постоји пет непознатих величина, потребно је користити пет мерних интервала. По препоруци аутора Chunxiang и Daling [Chunxiang и Daling, 1983], коришћени су следећи интервали:

$$\Delta t'_1 = (60 - 240) s$$

$$\Delta t'_2 = (300 - 1200) s$$

$$\Delta t'_3 = (1260 - 2400) s$$

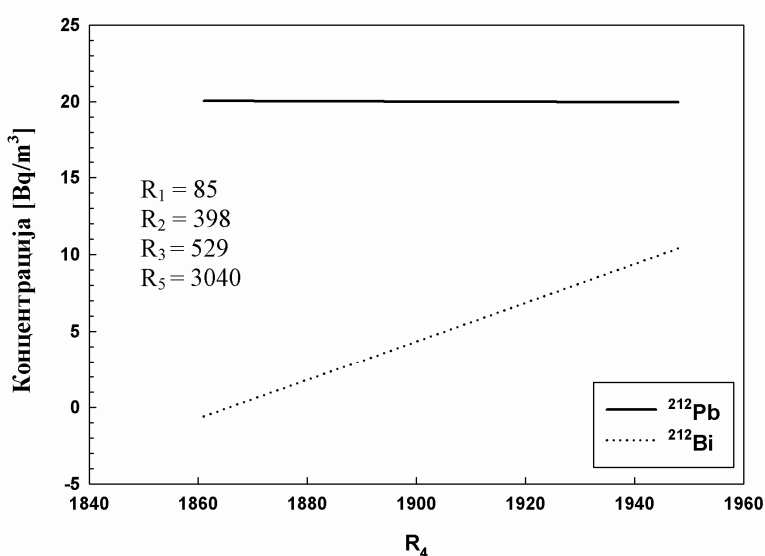
$$\Delta t'_4 = (9000 - 15000) s$$

$$\Delta t'_5 = (21600 - 33600) s$$

Задавањем времена филтрирања од 20 min и коришћењем истих параметара мерења као и раније, добијени су следећи алфа-одброји:

$$R_1 = 85, R_2 = 398, R_3 = 529, R_4 = 1905 \text{ и } R_5 = 3040.$$

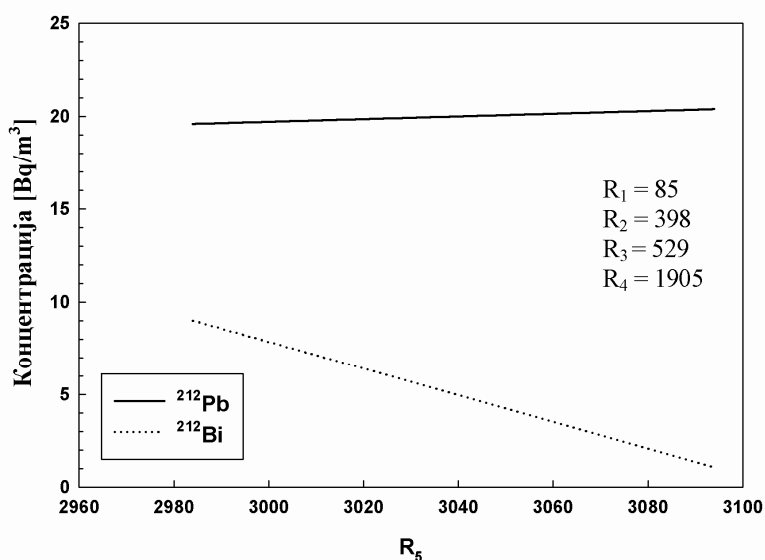
Може се приметити да су четврти и пети интервал изабрани тако да почињу тек након потпуног распада и нестанка краткоживећих потомака радона са филтера. Затим је припремљен инверзни програм који рачуна активности потомака на основу алфа-одброја у пет интервала. Програм враћа тачне вредности концентрација потомака у ваздуху.



Слика 10.6 Добијене вредности концентрација торонских потомака у ваздуху у функцији одброја детектованих у четвртом интервалу, R_4

Следећи корак представља варирање одброја R_4 у границама $R_4 \pm \sqrt{R_4}$ и рачунање концентрација потомака у ваздуху. Резултати су приказани на Слици 10.6. Занимљиво је приметити да концентрација ^{212}Pb готово да зависи од варијације одброја R_4 . Насупрот томе, ^{212}Bi је веома осетљив и расте од -0.6 до 10 Bq m^{-3} (неки од резултата имају и негативне вредности).

Даље, одброј R_5 је вариран у опсегу $R_5 \pm \sigma$ и концентрације потомака су поново израчунаване. Резултати су приказани на Слици 10.7.



Слика 10.7 Концентрације ^{212}Pb и ^{212}Bi добијене варирањем одброја у последњем интервалу мерења, R_5

Концентрација ^{212}Pb и у овом случају слабо зависи од одброја R_5 (мада мало више него у претходном случају), док концентрација ^{212}Bi јако опада са повећањем одброја у петом интервалу.

10.3 Анализа стандардне девијације и детерминанте система

Као што је већ речено, практична реализација методе мерења концентрација потомака радона и торона на основу филтрирања ваздуха кроз одговарајуће филтере је често праћена потешкоћама у смислу добијања нетачних или чак физички неприхватљивих вредности. У претходном поглављу разматрана је поузданост методе, илустровањем утицаја статистике бројања на тачност коначних резултата у конкретним и реалним примерима. У наставку ће бити изложена детаљна и уопштена анализа тачности и оптимизације мерне методе засноване на мерењу алфа-активности.

Систем једначина који се користи за одређивање броја потомака радона и торона на филтеру у тренутку престанка филтрирања може се једноставније написати помоћу матричне једначине:

$$R = G \cdot N_0 \quad (10.31)$$

где су коришћене следеће ознаке за матрице:

$$R = \begin{bmatrix} R1 \\ R2 \\ R3 \\ R4 \\ R5 \end{bmatrix} \quad G = \begin{bmatrix} a_1 & b_1 & c_1 & d_1 & e_1 \\ a_2 & b_2 & c_2 & d_2 & e_2 \\ a_3 & b_3 & c_3 & d_3 & e_3 \\ a_4 & b_4 & c_4 & d_4 & e_4 \\ a_5 & b_5 & c_5 & d_5 & e_5 \end{bmatrix} \quad N_0 = \begin{bmatrix} N_{10} \\ N_{20} \\ N_{30} \\ N_{40} \\ N_{50} \end{bmatrix} \quad (10.32)$$

Елементи R_1, R_2, R_3, R_4 и R_5 представљају укупне алфа-одброје детектоване са филтера током пет интервала мерења, док су $N_{10}, N_{20}, N_{30}, N_{40}, N_{50}$ бројеви атома ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{212}Pb и ^{212}Bi , респективно, на филтеру у тренутку престанка филтрирања.

Елементи матрице система, G , су:

$$a_i = \varepsilon [\exp(-\lambda_1 t_{Pi}) - \exp(-\lambda_1 t_{Ki})] + \varepsilon \lambda_3 \left[\frac{\lambda_2}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_1 - \lambda_3)} (\exp(-\lambda_1 t_{Pi}) - \exp(-\lambda_1 t_{Ki})) + \right. \quad (10.33)$$

$$\left. \frac{\lambda_1}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_3)} (\exp(-\lambda_2 t_{Pi}) - \exp(-\lambda_2 t_{Ki})) + \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_3 (\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} (\exp(-\lambda_3 t_{Pi}) - \exp(-\lambda_3 t_{Ki})) \right] \quad (10.34)$$

$$b_i = \varepsilon \frac{\lambda_3 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_3} \left[\frac{\exp(-\lambda_3 t_{Pi}) - \exp(-\lambda_3 t_{Ki})}{\lambda_3} - \frac{\exp(-\lambda_2 t_{Pi}) - \exp(-\lambda_2 t_{Ki})}{\lambda_2} \right] \quad (10.34)$$

$$c_i = \varepsilon (\exp(-\lambda_3 t_{Pi}) - \exp(-\lambda_3 t_{Ki})) \quad (10.35)$$

$$d_i = \varepsilon \frac{\lambda_4 \lambda_5}{\lambda_5 - \lambda_4} \left[\frac{\exp(-\lambda_4 t_{Pi}) - \exp(-\lambda_4 t_{Ki})}{\lambda_4} - \frac{\exp(-\lambda_5 t_{Pi}) - \exp(-\lambda_5 t_{Ki})}{\lambda_5} \right] \quad (10.36)$$

$$e_i = \varepsilon [\exp(-\lambda_5 t_{Pi}) - \exp(-\lambda_5 t_{Ki})] \quad (10.37)$$

где ε представља ефикасност алфа-детекције, $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \lambda_4$ и λ_5 су константе распада ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{212}Pb и ^{212}Bi , респективно, а t_{Pi} и t_{Ki} су почетни и крајњи тренутак i -тог мерног интервала ($i = 1, 2, \dots, 5$).

Множењем матричне једначине (10.31) инверзном матрицом матрице G , добија се следећи израз:

$$N_0 = G^{-1} \cdot R \quad (10.38)$$

Из ове једначине се директно добијају бројеви потомака радона и торона на филтеру у тренутку престанка филтрирања. Ови бројеви су повезани са концентрацијама радонових и торонових потомака у ваздуху следећим релацијама:

$$n_1 = N_{10} \frac{\lambda_1}{\eta \nu [1 - \exp(-\lambda_1 T)]} \quad (10.39)$$

$$n_2 = \frac{1}{1 - \exp(-\lambda_2 T)} \left\{ \frac{N_{20} \lambda_2}{\eta \nu} - n_1 \left[1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \exp(-\lambda_1 T) + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \exp(-\lambda_2 T) \right] \right\} \quad (10.40)$$

$$n_3 = \frac{1}{1 - \exp(-\lambda_3 T)} \left\{ \frac{N_{30} \lambda_3}{\eta \nu} - n_1 \left[1 - \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} \exp(-\lambda_1 T) + \frac{\lambda_1 \lambda_3}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_2)} \exp(-\lambda_2 T) - \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_2)} \exp(-\lambda_3 T) \right] - n_2 \left[1 - \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} \exp(-\lambda_2 T) + \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \exp(-\lambda_3 T) \right] \right\} \quad (10.41)$$

$$n_4 = N_{40} \frac{\lambda_4}{\eta \nu [1 - \exp(-\lambda_4 T)]} \quad (10.42)$$

$$n_5 = \frac{1}{1 - \exp(-\lambda_5 T)} \left\{ \frac{N_{50} \lambda_5}{\eta \nu} - n_4 \left[1 - \frac{\lambda_5}{\lambda_5 - \lambda_4} \exp(-\lambda_4 T) + \frac{\lambda_4}{\lambda_5 - \lambda_4} \exp(-\lambda_5 T) \right] \right\} \quad (10.43)$$

где T представља време филтрирања, а n_1, n_2, n_3, n_4 и n_5 су бројеви атома ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{212}Pb и ^{212}Bi по јединичној запремини ваздуха. Ефикасност филтера је означена са η , а ν представља брзину филтрирања.

На основу претходних једначина, активносне концентрације ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{212}Pb и ^{212}Bi у ваздуху (означене са A_1, A_2, A_3, A_4 и A_5 , респективно) могу се изразити директно преко алфа-одброја измерених током пет интервала:

$$\begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \\ A_3 \\ A_4 \\ A_5 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} z_{11} & z_{12} & z_{13} & z_{14} & z_{15} \\ z_{21} & z_{22} & z_{23} & z_{24} & z_{25} \\ z_{31} & z_{32} & z_{33} & z_{34} & z_{35} \\ z_{41} & z_{42} & z_{43} & z_{44} & z_{45} \\ z_{51} & z_{52} & z_{53} & z_{54} & z_{55} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} R_1 \\ R_2 \\ R_3 \\ R_4 \\ R_5 \end{bmatrix} \quad (10.44)$$

где се елементи z_{ij} матрице система, Z , добијају коришћењем једначина (10.33) – (10.37) и (10.39) – (10.43). Ово се може написати и на други начин:

$$A_i = \sum_{j=1}^5 z_{ij} \cdot R_j \quad (i = 1, 2, \dots, 5) \quad (10.45)$$

На основу формуле за кумулативну грешку [Knoll, 1999], стандардне девијације концентрација радонових и торонових потомака у ваздуху (једначина 10.45) могу се рачунати на следећи начин:

$$\sigma(A_i) = \sqrt{\sum_{j=1}^5 z_{ij}^2 \cdot R_j} \quad (i = 1, 2, \dots, 5) \quad (10.46)$$

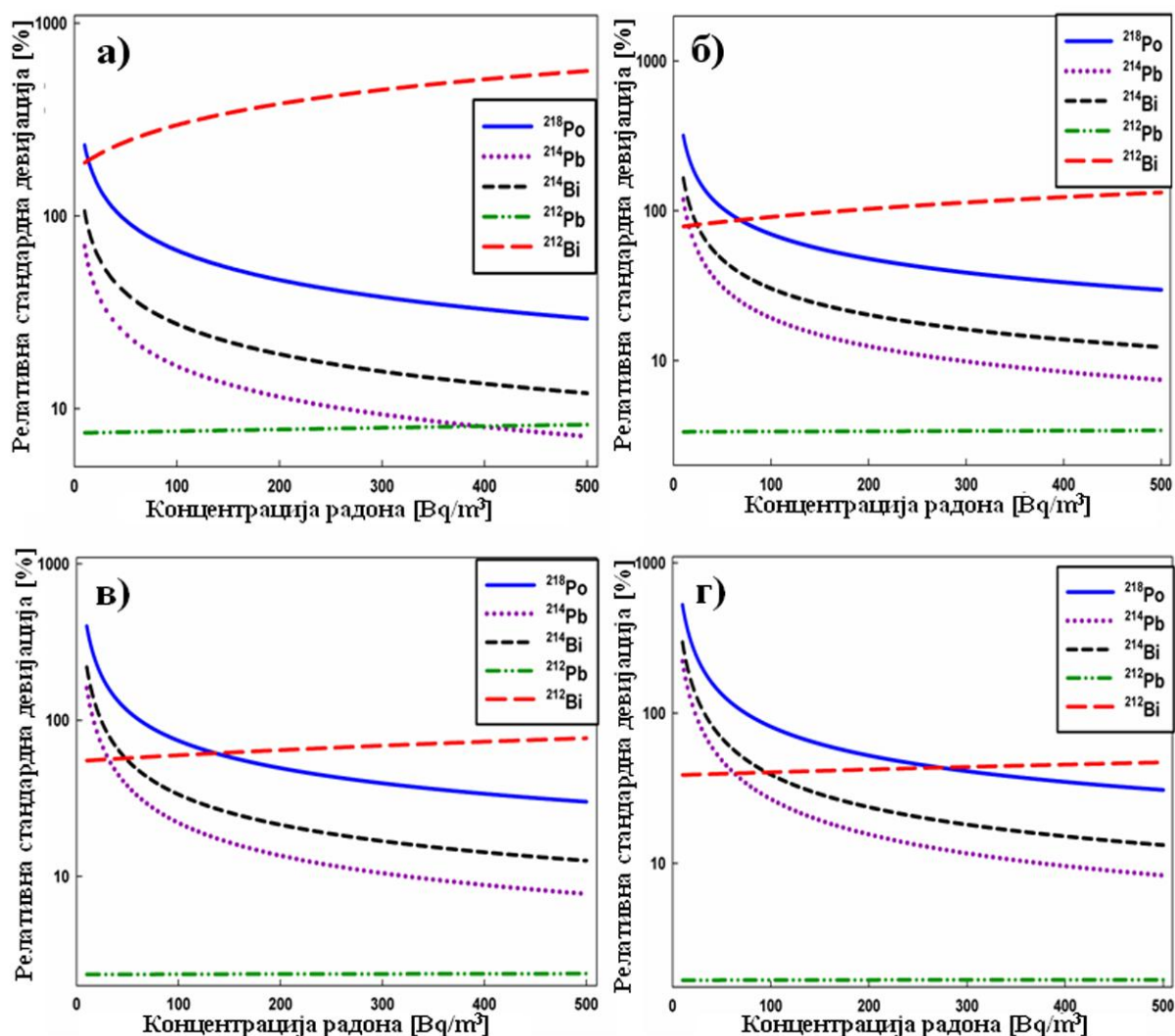
Претходна једначина је добијена узимајући $\sqrt{R}$ за стандардну девијацију детектовања R алфа-импулса током одговарајућег мерног интервала. Такође је претпостављено да нема других извора грешке у систему тј. сви остали параметри су третирани као константе.

Програм написан у стандардном Fortran 90 програмском језику је коришћен за анализирање претходне једначине. Један део програма рачуна одброје који би били детектовани у одређеним временским интервалима, користећи унапред задате вредности радонових и торонових концентрација у ваздуху. Ови прорачуни се заснивају на једначини (10.31), једначинама (10.33) – (10.37) и једначинама (10.39) – (10.43). Други део програма рачуна елементе матрице Z и користи претходно добијене одброје за одређивање релативних стандардних девијација концентрација радонових и торонових потомака. Он такође испитује и понашање детерминанте матрице Z и њен утицај на стабилност система.

10.3.1 Варирање концентрација потомака радона и торона у ваздуху

Слика 10.8 приказује релативне стандардне девијације, σ_i , дефинисане једначином (10.47), у функцији концентрација радонових и торонових потомака у ваздуху.

$$\sigma_i = \frac{\sigma(A_i)}{A_i} \quad (i = 1, 2, \dots, 5) \quad (10.47)$$



Слика 10.8 Релативне стандардне девијације потомака у функцији концентрације радона у ваздуху. Коцентрације торона су 20 Bq m^{-3} (а); 100 Bq m^{-3} (б); 200 Bq m^{-3} (в); 400 Bq m^{-3} (г)

Концентрације потомака су рачунате из задатих концентрација радона и торона у ваздуху (A_{Rn} , A_{Tn}), коришћењем релација:

$$A_i = F_i \cdot A_{Rn} \quad (i = 1, 2, 3) \quad (10.48)$$

$$A_j = F_j \cdot A_{Tn} \quad (j = 4, 5) \quad (10.49)$$

Следећи равнотежни фактори, F_1 , F_2 , F_3 , F_4 и F_5 , су употребљени за ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{212}Pb и ^{212}Bi , респективно: $F_1 (^{218}\text{Po}) = 0.7249$; $F_2 (^{214}\text{Pb}) = 0.3722$; $F_3 (^{214}\text{Bi}) = 0.2719$; $F_4 (^{212}\text{Pb}) = 0.0576$; $F_5 (^{212}\text{Bi}) = 0.0437$. Ове вредности су добијене коришћењем следећих параметара Јакобијевог модела: $\lambda_v = 0.55 \text{ h}^{-1}$ (брзина вентилације); $\lambda_a = 50 \text{ h}^{-1}$ (брзина припајања); $\lambda_d^u = 20 \text{ h}^{-1}$ (брзина депозиције неприпојених потомака); $\lambda_d^a = 0.2 \text{ h}^{-1}$ (брзина депозиције припојених потомака).

Концентрација радона у ваздуху је варирана у интервалу од 10 до 500 Bq m^{-3} , а концентрација торона има вредности: 20 Bq m^{-3} (Слика 10.8а), 100 Bq m^{-3} (Слика 10.8б), 200 Bq m^{-3} (Слика 10.8в) и 400 Bq m^{-3} (Слика 10.8г). Као и раније, коришћени су препоручени интервали мерења:

$$\Delta t'_1 = (60 - 240)s; \Delta t'_2 = (300 - 1200)s; \Delta t'_3 = (1260 - 2400)s; \Delta t'_4 = (9000 - 15000)s$$

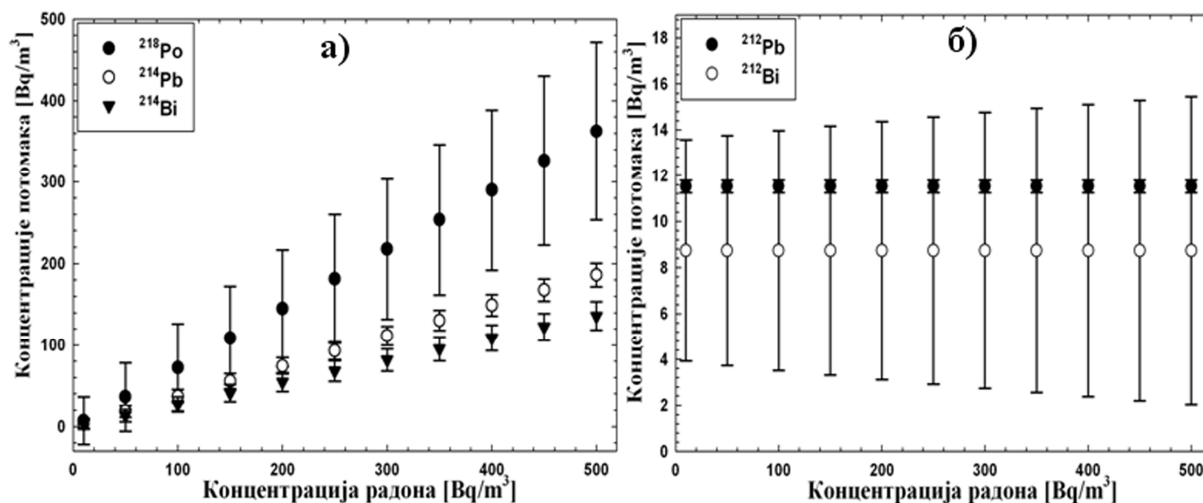
$$\Delta t'_5 = (21600 - 33600)s.$$

Претпостављене су реалне вредности експерименталних параметара: $\eta = 1$ (ефикасност филтера), $\nu = 0.2 \text{ l/s}$ (брзина филтрирања) и $\varepsilon = 0.1$ (ефикасност алфа-бројања)

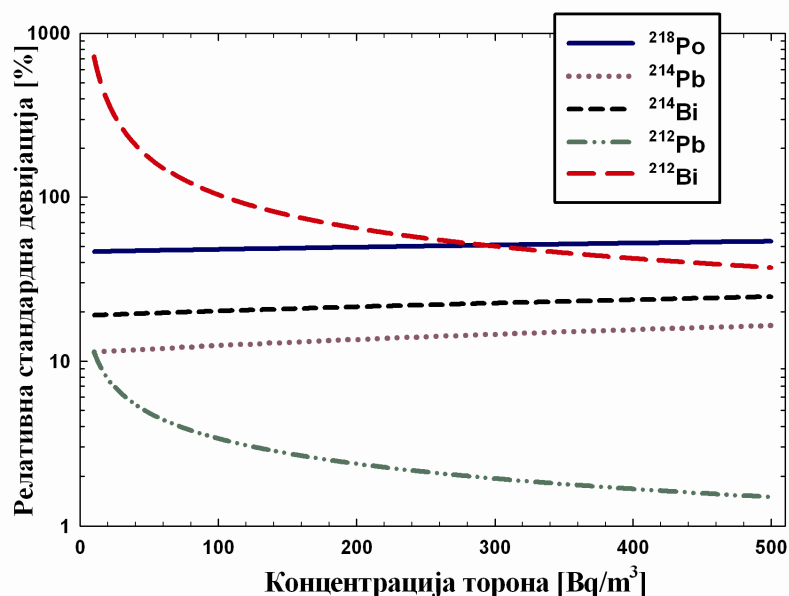
Повећање концентрације радона у ваздуху доводи до смањења релативних стандардних девијација сва три радонова потомка. Са Сlike 10.8а се може уочити да у присуству 20 Bq m^{-3} торона у ваздуху, концентрација радона мора бити већа од 45 Bq m^{-3} како би релативне стандардне девијације сва три радонова потомка биле мање од 100%. Генерално, релативна стандардна девијација ^{218}Po је знатно већа од релативних стандардних девијација ^{214}Pb и ^{214}Bi . Пораст концентрације торона у ваздуху води до благог пораста стандардних девијација радонових потомака.

Са друге стране, релативна стандардна девијација ^{212}Bi расте са порастом концентрације радона, док показује супротно понашање у случају пораста концентрације торона. Релативна стандардна девијација ^{212}Pb је веома ниска у свим случајевима и не показује велике промене при порасту концентрације радона тј. његових потомака.

Слика 10.9 приказује конкретне вредности концентрација потомака радона и торона, добијених на основу једначина (10.48) и (10.49), са приказаним грешкама које одговарају вредностима стандардних девијација. Коришћене су претходно поменуте вредности параметара, а приказани резултати су добијени за концентрацију торона од 200 Bq m^{-3} и варирање концентрације радона у интервалу од 10 до 500 Bq m^{-3} .



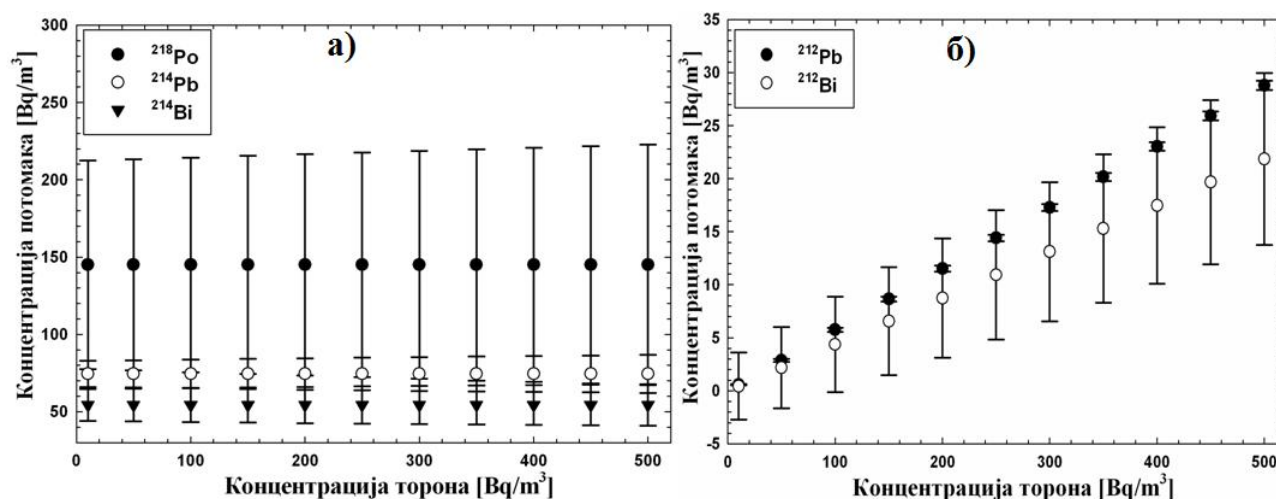
Слика 10.9 Концентрације потомака радона (а) и торона (б) са приказаним грешкама које одговарају вредностима стандардних девијација. Концентрација торона је 200 Bq m^{-3}



Слика 10.10 Релативне стандардне девијације потомака радона и торона у функцији концентрације торона. Концентрација радона је 200 Bq m^{-3}

Утицај пораста концентрације торона на релативне стандардне девијације потомака је јасније приказан на Слици 10.10. Претпостављена концентрација радона у ваздуху је 200 Bq m^{-3} , а концентрација торона је варирана од 10 до 500 Bq m^{-3} . Очигледно, у присуству 200 Bq m^{-3} радона у ваздуху, релативна стандардна девијација концентрације ^{212}Bi је мања од 100% за $A_{Tn} > 100 \text{ Bq m}^{-3}$, а пада испод 50% тек за $A_{Tn} > 300 \text{ Bq m}^{-3}$.

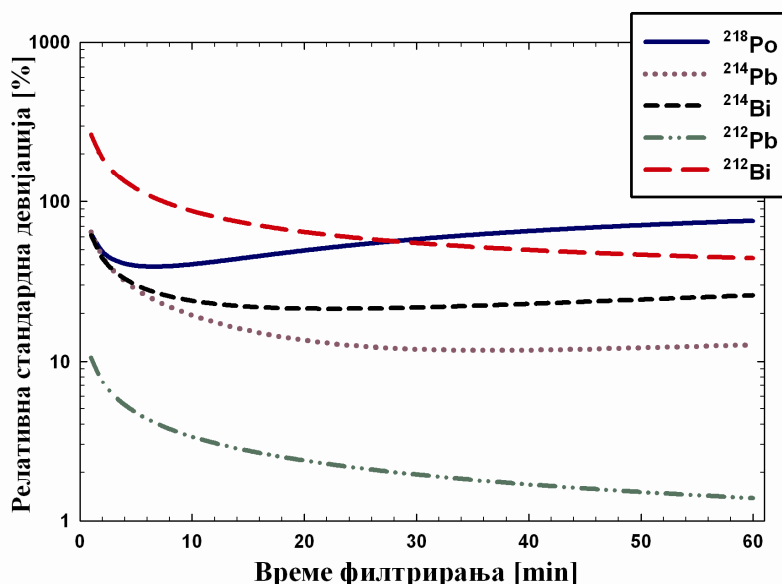
Конкретне вредности концентрација радонових и торонових потомака, са припадајућим грешкама, приказане су на Слици 10.11. Као што је већ поменуто, резултати се односе на претпостављену концентрацију радона од 200 Bq m^{-3} .



Слика 10.11 Концентрације потомака радона (а) и торона (б) са грешкама које одговарају стандардним девијацијама. Концентрација радона је 200 Bq m^{-3}

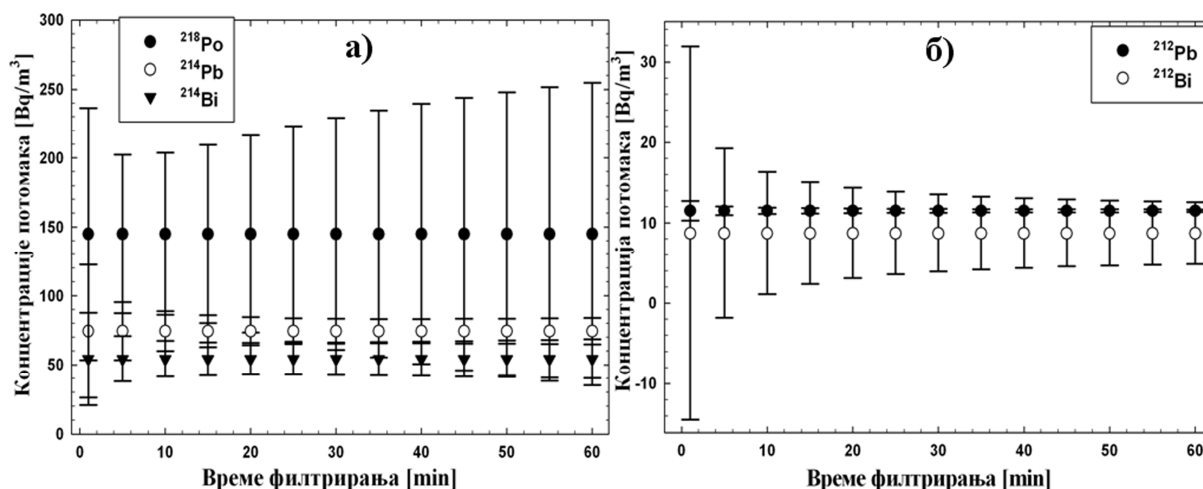
10.3.2 Варирање времена филтрирања

Претходно приказани резултати су добијени коришћењем времена филтрирања од 20 минута. Слика 10.12 приказује релативне стандардне девијације концентрација радонових и торонових потомака у функцији времена филтрирања које је варирано у интервалу од 1 до 60 минута. Претпостављене концентрације радона и торона у ваздуху су $A_{Rn} = A_{Tn} = 200 \text{ Bq m}^{-3}$.



Слика 10.12 Релативне стандардне девијације концентрација потомака радона и торона у функцији времена филтрирања

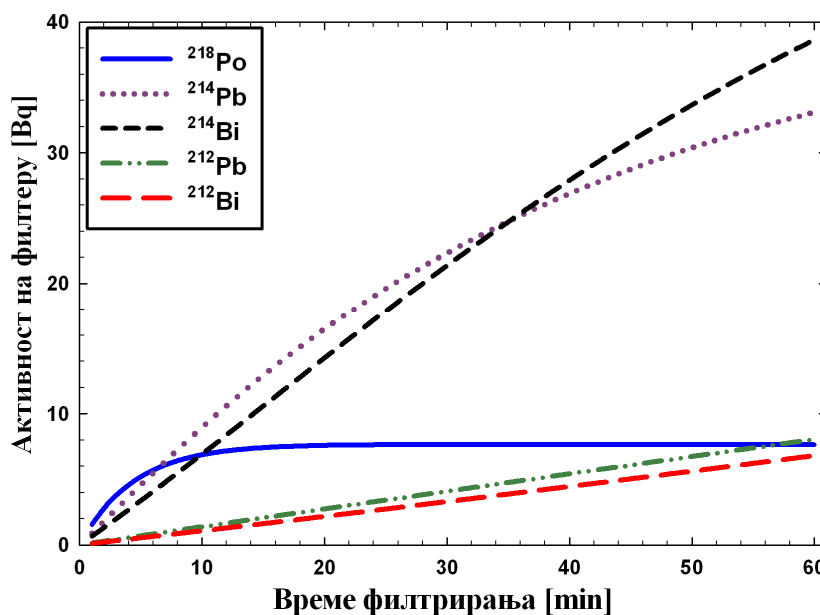
Утицај трајања филтрирања је такође илустрован и на Слици 10.13. која приказује конкретне концентрације радонових и торонових потомака и њихове стандардне девијације, за поменуте услове.



Слика 10.13 Промене стандардних девијација концентрација потомака радона (а) и торона (б) при промени времена филтрирања. Концентрације радона и торона су $A_{Rn} = A_{Tn} = 200 \text{ Bq m}^{-3}$

Повећање времена филтрирања доводи до смањења релативних стандардних девијација оба торонска потомка (Слика 10.12 и Слика 10.13б). Међутим, релативна стандардна девијација радоновог потомка ^{218}Po опада током првих неколико минута, а након тога има очигледну тенденцију пораста са порастом времена филтрирања (Слика 10.12 и Слика 10.13а). Овакво понашање се може повезати са порастом активности потомака радона и торона на филтеру током процеса филтрирања (Слика 10.14). Као што је претходно показано, релативне стандардне девијације радонових и торонових потомака зависе од самих вредности њихових концентрација у ваздуху, односно од њихових активности "прикупљених" на филтеру за време филтрирања. Због симултаног одређивања, релативна стандардна девијација сваког појединачног потомка зависи од концентрација свих пет потомака. Пораст концентрације једног потомка води до смањења његове релативне стандардне девијације, али истовремено, у мањој или већој мери, повећава релативне стандардне девијације осталих. Сходно томе, понашање релативне стандардне девијације ^{218}Po се може повезати са сатурацијом његове активности на филтеру, која се достиже већ након првих неколико минута филтрирања (Слика 10.14).

Релативне стандардне девијације преостала два радонова потомка, ^{214}Pb и ^{214}Bi , такође показују благи пораст након достизања својих минималних вредности, али је то мање наглашено и не тако очигледно.



Слика 10.14 Пораст активности радонових и торонових потомака на филтеру.
Концентрације радона и торона су $A_{Rn} = A_{Tn} = 200 \text{ Bq m}^{-3}$

Табела 10.3 приказује минималне и максималне релативне стандардне девијације потомака и одговарајућа времена филтрирања, добијена за претходно дате услове.

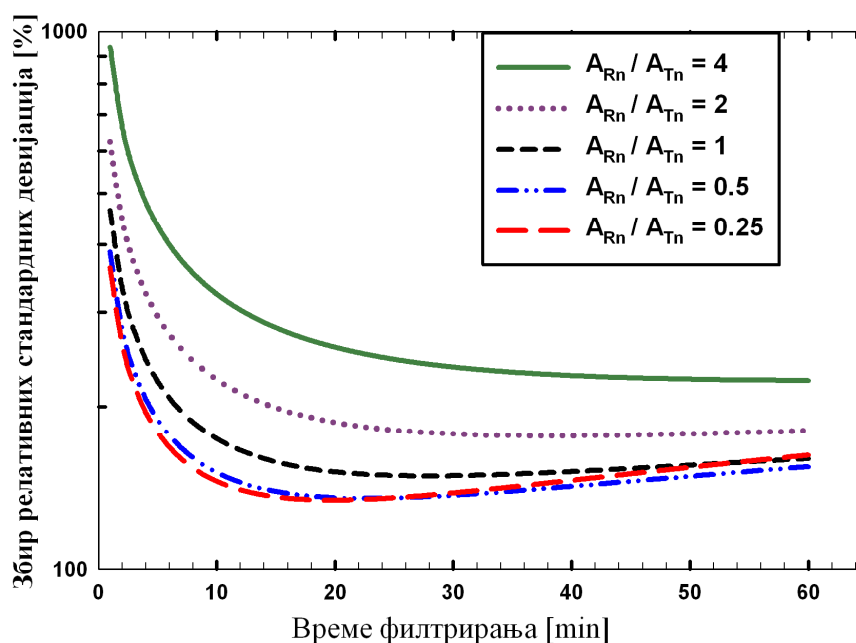
Табела 10.3 Минималне и максималне релативне стандардне девијације са одговарајућим периодима филтрирања

	Активносна концентрација у ваздуху [Bq m ⁻³]	Максимална релативна стандардна девијација $\sigma_{\max}$ [%]	Трајање филтрирања које одговара $\sigma_{\max}$ [min]	Минимална релативна стандардна девијација $\sigma_{\min}$ [%]	Трајање филтрирања које одговара $\sigma_{\min}$ [min]
²¹⁸ Po	144.9	75.77	60	39.15	7
²¹⁴ Pb	74.4	64.68	1	11.77	36
²¹⁴ Bi	54.4	61.54	1	21.38	22
²¹² Pb	11.5	10.57	1	1.38	60
²¹² Bi	8.7	265.27	1	44.23	60

У циљу налажења времена филтрирања које је најпогодније са аспекта што тачнијег одређивања концентрација свих пет потомака истовремено, изабрана је произвољна гранична вредност релативне стандардне девијације, а затим је она сукцесивно смањивана све док није пронађена најмања вредност која задовољава услов да су релативне стандардне девијације свих пет потомака мање или једнаке тој граничној вредности. За дате услове мерења и концентрације радона и торона од 200 Bq m^{-3} , одређена је минимална гранична вредност од 56.46 %, а одговарајуће трајање филтрирања износи 28 минута. Иста оптимална дужина филтрирања је такође добијена и минимизирањем укупног збира свих пет релативних стандардних девијација. Дакле, може се сматрати да је поменуто време филтрирања

најпогодније у смислу добијања најтачнијих резултата истовременог мерења концентрација свих пет потомака у једном експерименту.

Претходно разматрање је засновано на претпоставци да су концентрације радона и торона у ваздуху једнаке и износе 200 Bq m^{-3} . Истовремено варирање концентрација радона и торона води до промена релативних стандардних девијација, али трајање филтрирања које одговара минималној суми свих пет релативних стандардних девијација остаје исто све док се однос између ове две концентрације не мења ($A_{Rn} / A_{Tn} = 1$). Међутим, ако се овај однос концентрација радона и торона промени, промениће се и период филтрирања који одговара минималној вредности укупне суме релативних стандардних девијација. Слика 10.15 илуструје ово, приказујући зависност суме релативних стандардних девијација од дужине филтрирања за различите активносне концентрације торона у ваздуху, уз претпоставку да се концентрација радона не мења и износи $A_{Rn} = 200 \text{ Bq m}^{-3}$.



Слика 10.15 Укупна сума свих пет релативних стандардних девијација у функцији времена филтрирања, за различите односе концентрација радона и торона у ваздуху

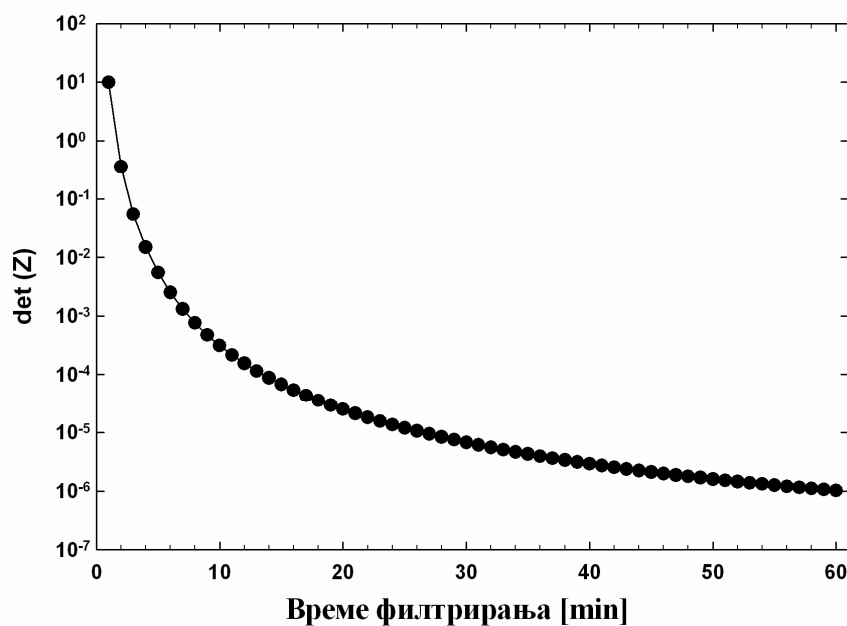
Очигледно, смањивањем концентрације торона (у односу на концентрацију радона) повећава оптимално трајање филтрирања. Насупрот томе, смањење односа A_{Rn} / A_{Tn} помера оптимално време филтрирања ка нижим вредностима, због доминације релативних стандардних девијација радонових потомака. Минималне вредности функција представљених на Слици 10.15 и одговарајуће дужине филтрирања такође су дате и у Табели 10.4.

Табела 10.4 Минималне вредности суме стандардних девијација и одговарајући периоди филтрирања, за различите концентрације торона у ваздуху. Претпостављена је концентрација радона од 200 Bq m^{-3}

$A_{\text{Rn}}/A_{\text{Tn}}$	Минимална вредност укупне суме релативних стандардних девијација [%]	Одговарајуће време филтрирања [min]
4	223.81	60
2	176.69	38
1	148.6	28
0.5	135.07	23
0.25	133.98	20

Током испитивања поузданости методе мерења, такође је анализиран и систем представљен једначином (10.44). Детерминанта матрице Z може се користити као показатељ осетљивости добијених концентрација потомака на промену одбоја детектованих током пет временских интервала. Мања детерминанта обезбеђује бољу стабилност и већу тачност добијених резултата, што ће касније бити и показано.

Слика 10.16 показује утицај пораста времена филтрирања на детерминанту матрице Z , уз коришћење претходно датих мерних интервала.



Слика 10.16 Детерминанта матрице Z у функцији времена филтрирања

Повећањем времена филтрирања од 1 до 60 минута, детерминанта матрице Z опада од 10 до 10^{-6} . Узимајући у обзир чињеницу да већа детерминанта указује на већу осетљивост резултата, пожељно је што дуже време филтрирања. Претходно добијеном периоду филтрирања од 28 минута одговара вредност детерминанте од $8.3 \cdot 10^{-6}$.

Вредност детерминанте не зависи од концентрација радона и торона у ваздуху, већ само од избора интервала мерења и параметара филтрирања (смањење ефикасности филтера и брзине филтрирања воде до повећања детерминанте)

10.3.3 Варирање мерних интервала

Усвајањем 28 минута за оптимално време филтрирања, мерни интервали су варирани на начин приказан у Табели 10.5. Задато је да мерење алфа активности са филтера почиње 1 минут након престанка филтрирања. Трајање прва три мерна интервала је варирано од 1 до 30 минута, са кораком од 2 минута, док трајање последња два мерна интервала узима вредности од 10 минута до 4 сата, са кораком од по 10 минута. Временски размак између било која два сукцесивна мерења је подешен на 1 минут.

Табела 10.5 Варирање интервала мерења алфа-активности са филтера

Први интервал	почетак ₁	1 min
	трајање ₁	2 min – 30 min
Други интервал	почетак ₂	почетак ₁ + трајање ₁ + 1 min
	трајање ₂	2 min – 30 min
Трећи интервал	почетак ₃	почетак ₂ + трајање ₂ + 1 min
	трајање ₃	2 min – 30 min
Четврти интервал	почетак ₄	почетак ₃ + трајање ₃ + 1 min
	трајање ₄	10 min – 240 min
Пети интервал	почетак ₅	почетак ₄ + трајање ₄ + 1 min
	трајање ₅	10 min – 240 min

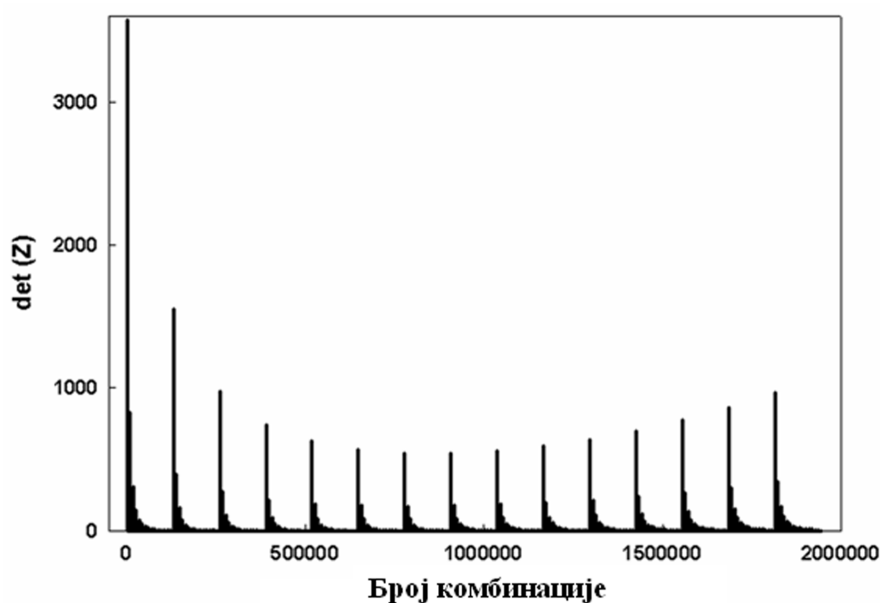
Тестирано је укупно 1.944.000 различитих комбинација мерних интервала. Стандардне девијације концентрација радонових и торонових потомака су рачунате за сваку комбинацију.

Табела 10.6 Комбинације мерних интервала које дају најмање суме релативних стандардних девијација.

1. интервал почетак – крај [min]	2. интервал почетак – крај [min]	3. интервал почетак – крај [min]	4. интервал почетак – крај [min]	5. интервал почетак – крај [min]	Сума релативних стандардних девијација [%]	det[Z] [× 10 ⁻⁶]
1 – 3	4 – 34	35 – 65	66 – 306	307 – 547	138.386	1.443
1 – 5	6 – 34	35 – 65	66 – 306	307 – 547	138.013	0.986
1 – 5	6 – 36	37 – 67	68 – 308	309 – 539	137.930	1.012
1 – 5	6 – 36	37 – 67	68 – 308	309 – 549	137.383	0.97

Табела 10.6 приказује комбинације које дају најмање суме релативних стандардних девијација свих пет потомака. Добијени резултати се односе на једнаке концентрације радона и торона у ваздуху од 200 Bq m^{-3} .

Детерминанта матрице Z је такође рачуната за свих 1.944.000 комбинација интервала и добијен је широк опсег вредности. Слика 10.17 илуструје добијене резултате за комбинације формиране на основу Табеле 10.5 и то тако што су најпре прва четири интервала постављена на најмање вредности, док се трајање петог интервала мења у оквиру дефинисаног опсега. Након тога, трајање четвртог интервала се повећава корак по корак, а пети интервал у сваком кораку поново пролази кроз све могуће вредности. Затим се варира и трећи интервал итд. Ово је разлог периодичног понашања функције приказане на Слици 10.17. Највећи пикови одговарају комбинацијама у којима се варира први интервал, при чему су сви остали интервали постављени на најмање вредности.



Слика 10.17 Вредности детерминанте добијене за различите комбинације интервала мерења

У табели 10.7 дате су две комбинације мерних интервала које дају највећу и најмању вредност детерминанте. Очигледно је да највећа вредност детерминанте одговара комбинацији у којој свих пет интервала има најкраће могуће вредности.

Концентрацијама радона и торона од по 200 Bq m^{-3} одговарају следеће вредности концентрација потомака у ваздуху: $A_A (^{218}\text{Po}) = 144.9 \text{ Bq m}^{-3}$; $A_B (^{214}\text{Pb}) = 74.4 \text{ Bq m}^{-3}$; $A_C (^{214}\text{Bi}) = 54.4 \text{ Bq m}^{-3}$; $A_4 (^{212}\text{Pb}) = 11.5 \text{ Bq m}^{-3}$; $A_5 (^{212}\text{Bi}) = 8.7 \text{ Bq m}^{-3}$.

Да би се испитало понашање система представљеног једначином (10.44), употребљена су два једноставна Фортранска програма. Један од њих је користио претходно поменуте

активносно концентрације потомака у ваздуху и интервале мерења који су дати у Табели 10.7, како би израчунао број алфа-импулса детектованих током пет поменутих интервала. Тачни одброји су такође приказани у Табели 10.7 и то као децимални бројеви, управо онако како се добијају на излазу програма. Други програм има супротну намену – он користи поменуте одброје и једначине које одговарају матричној једначини (10.44), са циљем да рачуна концентрације потомака радона и торона у ваздуху. Решења која даје овај програм су у добром слагању са првобитно задатим концентрацијама потомака и то потврђује да програми раде коректно и да је сам метод функционалан. Међутим, променом тачне вредности одброја (на улазу овог програма) за само један импулс и у само једном од интервала добијају се вредности концентрација потомака приказане у Табели 10.7.

Табела 10.7 Утицај вредности детерминанте на стабилност резултата

det(Z)	Интервали мерења [min]	Тачан одброј	Промена одброја	^{218}Po [Bq/m ³]	^{214}Pb [Bq/m ³]	^{214}Bi [Bq/m ³]	^{212}Pb [Bq/m ³]	^{212}Bi [Bq/m ³]
3.574×10^3	1 – 3	336.23	+ 1	173.2	452.9	642.6	231.1	-596.6
			- 1	117.2	-303.6	-533.9	-207.6	613.6
	4 – 6	307.30	+ 1	58.3	-1401.2	-2255.4	-854.6	2379.5
			- 1	232.	1550.3	2363.9	878.1	-2362.3
	7 – 9	291.18	+ 1	221.8	1660.6	2561.2	959.9	-2557.7
			- 1	68.5	-1511.4	-2452.7	-936.4	2574.9
	10 – 20	1355.16	+ 1	141.	-46.3	-141.7	-64.2	208.2
			- 1	149.3	195.5	250.2	87.7	-190.9
	21 – 31	1225.92	+ 1	145.8	97.8	93.1	27.5	-30.8
			- 1	144.6	51.2	15.3	-4.1	48.1
8.563×10^{-7}	1 – 9	1243.39	+ 1	146.2	74.3	54.4	11.5	8.7
			- 1	143.7	74.5	54.3	11.5	8.7
	10 – 40	3705.85	+ 1	144.0	74.5	54.5	11.5	8.7
			-1	145.9	74.4	54.3	11.5	8.7
	41 – 71	2564.46	+ 1	146.1	74.5	54.2	11.5	8.7
			- 1	145.1	74.5	54.4	11.5	8.7
	72 – 312	6859.41	+ 1	144.9	74.4	54.4	11.5	8.7
			- 1	145.2	74.5	54.4	11.5	8.7
	313 – 553	3794.348	+ 1	145.1	74.5	54.4	11.5	8.7
			- 1	144.9	74.4	54.4	11.5	8.8

Очигледно је да су, у случају комбинације са најмањом вредношћу детерминанте, резултати релативно стабилни на ове мале промене и добијене вредности се прилично добро слажу са претходним. Насупрот томе, решења система који има највећу вредност детерминанте матрице Z су изузетно осетљива на промене одброја у било ком временском интервалу и вредности које се добијају након ових малих промена се потпуно разликују од

претпостављених вредности концентрација потомака у ваздуху. Показује се да минималне промене одброја, чак и у другој децимали, доводе до значајних одступања добијених концентрација потомака од тачних вредности.

С обзиром да вредност детерминанте система не зависи од концентрација радона и торона у ваздуху, сличан закључак се може извести и са другим комбинацијама концентрација.

Симултано мерење свих пет концентрација потомака радона и торона у ваздуху методом филтрирања је непоуздано и може дати поједине резултате који значајно одступају од својих стварних вредности. Ово је нарочито изражено у случају релативно ниских концентрација потомака, када релативне стандардне девијације одређених вредности превазилазе 100%, па се могу очекивати непрецизни или чак физички неприхватљиви резултати. Ипак, метод се може сматрати довољно поузданим за мерење концентрације ^{212}Pb у ваздуху с обзиром да су релативна стандардна одступања овог тороновог потомка прилично мала и у случају ниских концентрација.

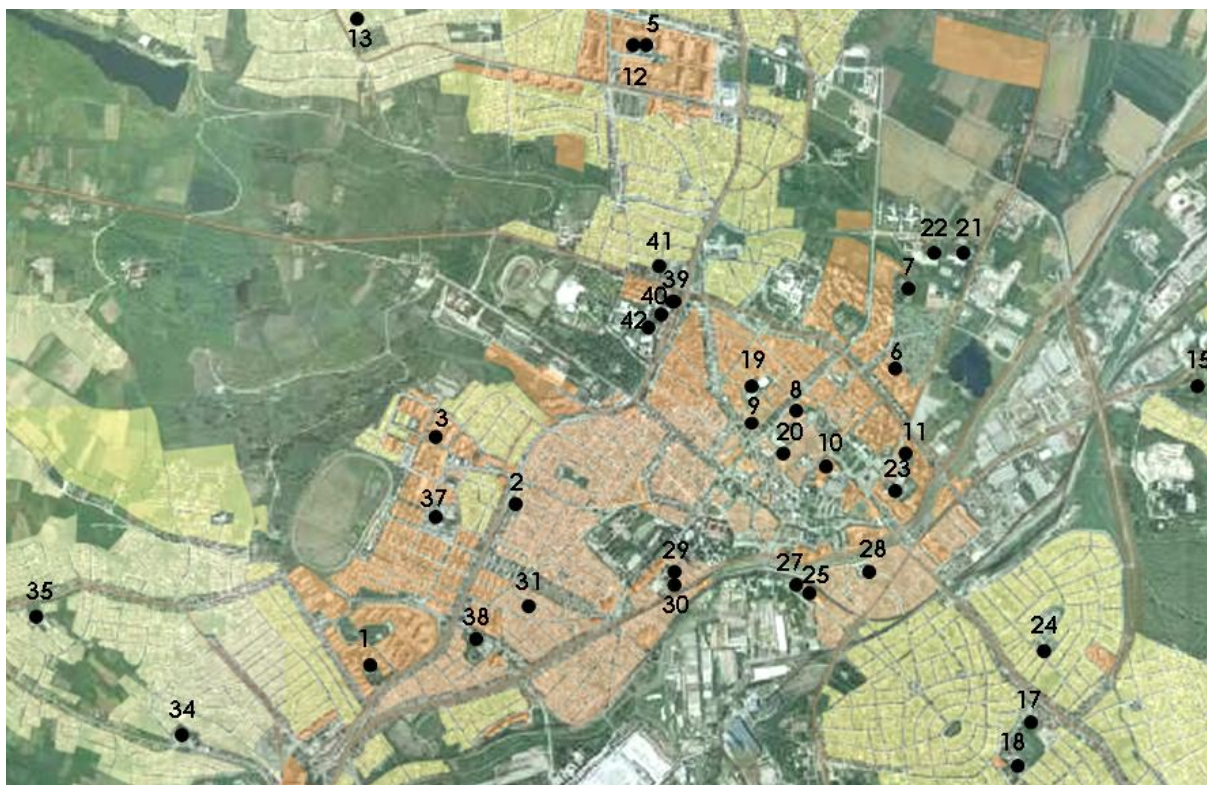
11. КОНЦЕНТРАЦИЈЕ РАДОНА У КРАГУЈЕВАЧКИМ ШКОЛАМА И ОБДАНИШТИМА

Са порастом сазнања о штетном утицају удисања радона и његових краткоживећих потомака на људско здравље, расло је и интересовање шире друштвене заједнице, али и специјалиста у области радиоокеологије широм света, за спровођење систематских мерења концентрација овог природног радиоактивног гаса и израду радонских мапа. У циљу процене и контроле излагања најмлађе популације, мерења концентрација радона у школама и обдаништима вршена су у великом броју земаља [Burghel и Cosma, 2012; Clouvas и др., 2011; Durcik и др., 1997; Gaidolfi и др., 1998; Maged, 2006; Obed и др., 2011; Rahman и др., 2009; Synnott и др., 2006; Trevisi и др., 2012; Venoso и др., 2009]. Истраживања овог типа која су спроведена у нашој земљи углавном су обухватала југо-источне и северне области Србије [Bochicchio и др., 2014; Forkaric и др., 2007; Zunic и др., 2001].

Систематска мерења концентрација радона се најчешће изводе на случајним узорцима стамбених објеката, али се, због потешкоћа везаних за постављање, чување и прикупљање детектора са ових локација, јавне установе, попут школа и обданишта, могу показати као погоднији избор. Осим тога, школе и обданишта су распрострањени по целој територији града, а њихова просторна расподела се може довести у везу са расподелом густине насељености.

Град Карагујевац (44° 22' СГШ; 20° 56' ИГД) представља привредни, културно-просветни и здравствени центар Шумадије. Састоји се из 57 насељених места и простире се на површини од 835 km². По величини заузима четврто место у Србији, а градско подручје насељава 150.835 становника (на основу пописа из 2011. године). Град има 15 државних обданишта, 22 основне и 9 средњих школа. Сви ови објекти били су укључени у истраживање, али је неколико детектора изгубљено током експеримента, па резултати са ових локација нису доступни.

Мапа града, са обележеним локацијама на којима је вршено мерење, дата је на Слици 11.1. Због боље видљивости, приказано је само уже градско подручје, тако да су изостављене неке локације у приградским насељима.



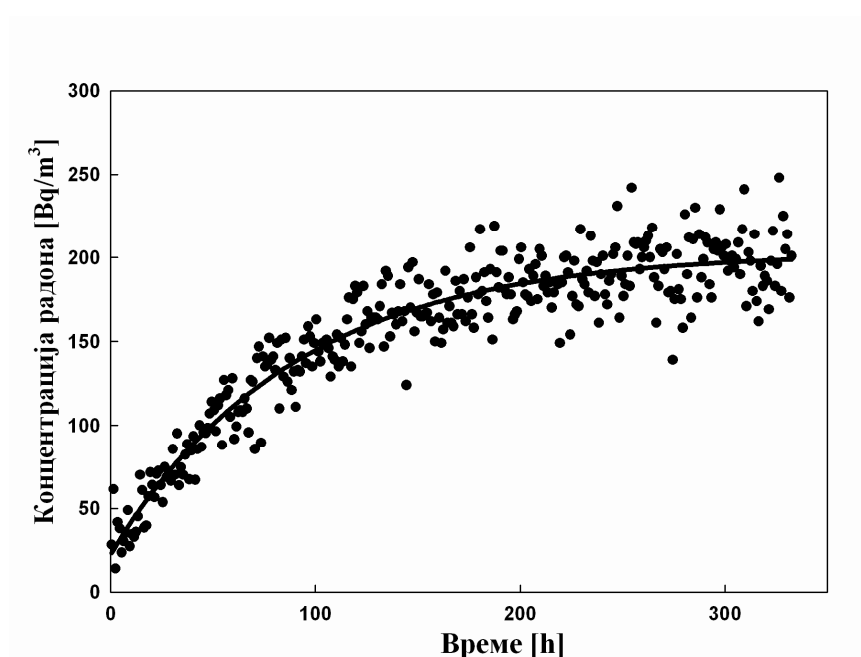
Слика 11.1 Градско подручје са обележеним локацијама школа и обданишта

11.1 Техника мерења

Мерења концентрација радона су вршена коришћењем дискриминативних радон/торон пасивних детектора (UFO), развијених у Националном Институту за Радиолошке Науке (NIRS, Chiba) у Јапану. Детаљнији опис конструкције и технике мерења ових дозиметара је дат у Глави 2. Иако UFO-детектори имају могућност истовременог мерења радона и торона, само радон је био предмет наших истраживања. Због проблематичне просторне расподеле концентрације торона унутар просторија, као и потешкоћа везаних за калибрацију детектора, торон није узет у разматрање.

11.2 Калибрација UFO-детектора за радон

Калибрација UFO-детектора за мерења концентрације радона извршена је помоћу коморе која је преко два вентила повезана са уређајем RAD7. Узорак који садржи ^{226}Ra затворен је у комору и концентрација радона је континуирано мерена у запремини коморе током 15 дана. Мерења су вршена у циклусима који су трајали по 1 h, па је концентрација добијена на крају сваког циклуса приписивана тренутку на средини одговарајућег циклуса. Пораст концентрације радона у комори приказан је на Слици 11.2.



Слика 11.2 Пораст концентрације радона у комори при калибрацији UFO-детектора

Временска промена концентрације радона у комори се може приказати упрошћеном једначином:

$$C(t) = \alpha + \beta \cdot e^{-\gamma \cdot t} \quad (11.1)$$

Константе α , β и γ су дефинисане на следећи начин:

$$\alpha = \frac{EA + M + C_{ext} \lambda_L V}{(\lambda + \lambda_L) V} \quad (11.2)$$

$$\beta = C_0 - \frac{EA + M + C_{ext} \lambda_L V}{(\lambda + \lambda_L) V} \quad (11.3)$$

$$\gamma = \lambda + \lambda_L \quad (11.4)$$

где су: $C(t)$ – активносна концентрација радона у комори; C_{ext} – концентрација радона изван коморе; E – јачина ексхалације радона; A – површина (или маса) узорка; V – слободна запремина коморе; M – допринос саме апаратуре; λ – константа радиоактивног распада; λ_L – брзина цурења.

Експериментални подаци приказани на Слици 11.2 фитовани су једначином (11.1) како би се добиле вредности параметара α , β и γ . Средња концентрација радона у комори је затим добијена на основу следеће једначине:

$$\bar{C} = \frac{\int_0^{\Delta t} C(t) dt}{\Delta t} = \alpha + \frac{\beta}{\gamma \cdot \Delta t} \cdot (1 - e^{-\gamma \cdot \Delta t}) \quad (11.5)$$

где је Δt укупно време мерења ($\Delta t = 15 d$).

Поред акивног мерења, средња концентрација радона је истовремено мерена и пасивно, помоћу UFO-детектора постављених унутар коморе. Након 15 дана излагања, поликарбонатни филмови су подвргнути процесу нагризања који се састоји од 30 min хемијског и 3 h електрохемијског третирања у растворима КОН (1 N и 8 N). Нагризање је вршено у инкубатору, при константној температури од 30°C. Коришћен је напон од 800 V, са фреквенцијом од 2 kHz. Након нагризања, поликарбонатни детектори су испирани раствором хлороводоничне киселине, а затим дестилованом водом, како би се процес нагризања потпуно зауставио.

Калибрациони коефицијент UFO-детектора за радон, k_{Rn} , добијен је помоћу једначине:

$$k_{Rn} = \frac{\rho_{Rn}}{\bar{C} \cdot \Delta t} \quad (11.6)$$

где ρ_{Rn} представља густину трагова на поликарбонатном детектору окренутом ка доњој полусфери (тј. број трагова по јединици површине озраченог детектора, умањен за претходно одређен број трагова присутан на неозраченим детекторима), $\bar{C}$ је средња концентрација радона израчуната из једначине (11.5), а Δt је време излагања.

Калибрациони коефицијент добијен на претходно описани начин износи $k_{Rn} = (0.026 \pm 0.003) (tr / cm^2) / (Bq m^{-3} d)$ и ова вредност је коришћена при даљим прорачунима концентрација радона мерених UFO-детекторима.

11.3 Резултати мерења

По две UFO коморе постављене су у свакој школи и обданишту. За мониторинг су биране просторије најниже спратности у којима бораве деца и наставно особље. Детектори су најчешће постављани на полице или ормариће, на растојању од најмање 20 cm од зидова и најмање 1 m изнад пода. Излагање је трајало тачно три месеца, од новембра 2013. до фебруара 2014. године. Након тога, детектори су прикупљени и подвргнути претходно

описаним процесима хемијског и електрохемијског нагризања. Резултати мерења су приказани у Табели 11.1.

Табела 11.1 Резултати мерења концентрација радона у школама и обдаништима

Број локације	Врста објекта*	Период изградње	Спратност**	Број деце	^{222}Rn [Bq/m ³]
1	О	1971-1980	0	400	46
2	О	1961-1970	0	240	74
3	О	1971-1980	0	226	43
4	О	2001-2010	0	160	145
5	О	1981-1990	0	400	98
6	О	2001-2010	0	145	75
7	О	1971-1980	0	103	82
8	О	1921-1945	0	158	32
9	О	1946-1960	0	190	71
10	О	1961-1970	0	20	27
11	О	1961-1970	0	162	68
12	ОШ	1981-1990	0	1400	40
13	ОШ	1981-1990	0	550	46
14	ОШ	2001-2010	-1	240	25
15	О	1971-1980	0	225	73
16	ОШ	1991-2000	0	235	74
17	О	1981-1990	0	350	141
18	ОШ	1971-1980	0	1176	35
19	ОШ	1961-1970	0	760	61
20	ОШ	-	0	880	73
21	СШ	1961-1970	0	900	60
22	СШ	1991-2000	0	1000	54
23	ОШ	1961-1970	0	1266	45
24	ОШ	1921-1945	0	400	69
25	СШ	пре 1920	0	245	55
26	ОШ	1971-1980	0	468	86
27	СШ	1921-1945	-1	1500	57
28	ОШ	1971-1980	0	839	48
29	О	1971-1980	0	250	51
30	ОШ	1946-1960	0	727	49
31	ОШ	1946-1960	0	86	75
32	ОШ	1991-2000	0	633	41
33	ОШ	1981-1990	0	331	41
34	ОШ	1991-2000	0	380	39
35	ОШ	1981-1990	-1	474	38
36	ОШ	-	0	329	53
37	ОШ	1971-1980	0	1085	32
38	ОШ	1961-1970	0	720	46
39	СШ	1946-1960	-1	1020	36
40	СШ	1921-1945	0	854	55
41	ОШ	1961-1970	0	330	78
42	СШ	1921-1945	-1	1450	67

* О – обданиште, ОШ – основна школа, СШ – средња школа

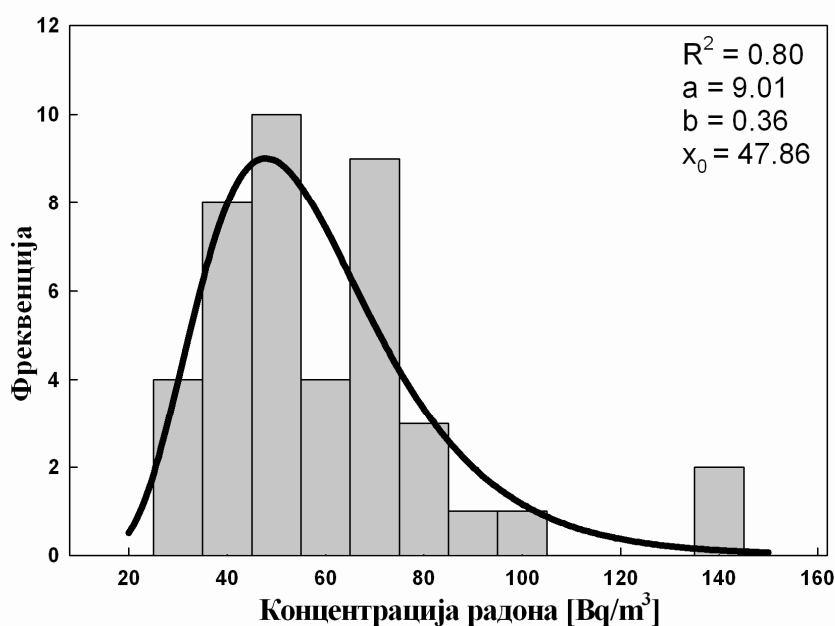
** 0 – приземље, -1 – подрум

Приказане концентрације су одређене као средње вредности резултата добијених читавањем два детектора постављена у различитим просторијама истог објекта, осим у случајевима када је један од детектора изгубљен током експеримента. Измерене концентрације радона се крећу у опсегу од 27 до 145 Bq m⁻³ у обдаништима и од 25 до 86 Bq m⁻³ у школама. Највећа концентрација је измерена у обданишту означеном бројем 4. У питању је приземни монтажни објекат, без подрума, саграђен током прве деценије 21. века. Иако је на овој локацији детектована највећа концентрација радона, она ипак не превазилази граничну вредност од 200 Bq m⁻³ која се препоручује за новоизграђене објекте [ICRP, 1993]. Такође треба имати у виду да су мерења вршена током зимских месеци и да су, због сезонских варијација концентрације радона, добијене вредности највероватније нешто више од годишњих средњих вредности на датим локацијама.

Средња концентрација радона на свим измереним локацијама износи 59.6 Bq m⁻³. Утежњавањем добијених резултата по броју деце која похађају поменуте школе и обданишта, добија се утежњена средња вредност од 54.5 Bq m⁻³. Ови резултати су у добром слагању са вредностима измереним у школама југоисточних градова Србије [Bochicchio и др., 2014]. Дескриптивна статистика је приказана у Табели 11.2.

Табела 11.2 Дескриптивна статистика измерених концентрација радона (вредности су дате у Bq m⁻³)

Минимум	Максимум	Средња вредност	Геометријска средина	Стандардна девијација	Медијана
25	145	59.6	55.1	25.6	54.5



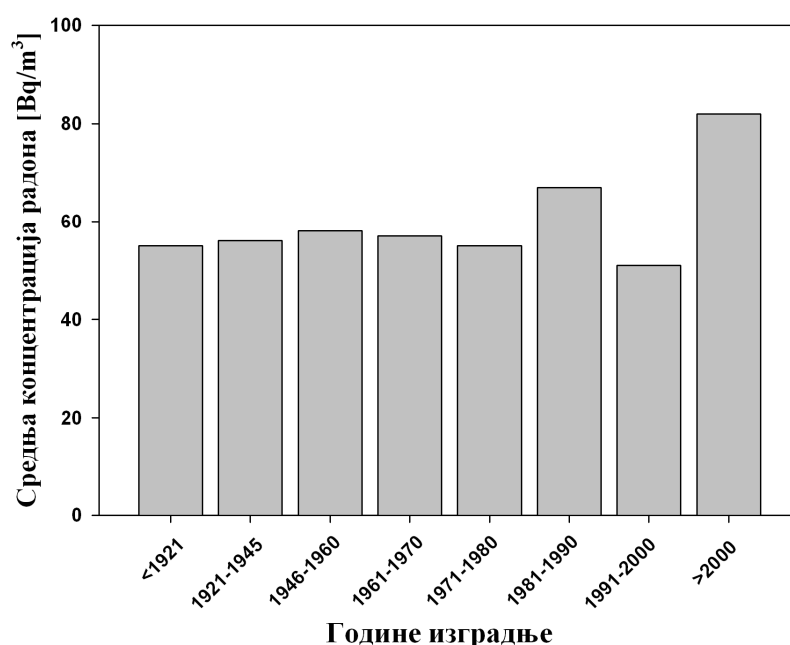
Слика 11.3 Фреквентна расподела концентрације радона у школама и обдаништима

Слика 11.3 представља фреквентну расподелу измерених концентрација. Колмогоров-Смирнов тест показује да су подаци у сагласности са логнормалном расподелом ($P = 0.63$).

Крива фитовања приказана на Слици 11.3 је добијена помоћу једначине:

$$y = a \cdot \exp\left(-\frac{(\ln(x/x_0))^2}{2b^2}\right) \quad (11.7)$$

Параметри фитовања a , b и x_0 , као и коефицијент детерминације, R^2 , такође су приказани на Слици 11.3.



Слика 11.4 Средње концентрације радона у зависности од периода изградње објекта

Добијени резултати мерења концентрације радона су подељени у 8 група, у зависности од година изградње објекта у којима је вршено мерење. Слика 11.4 приказује средњу концентрацију радона за сваки од разматраних периода. На хистограму се може видети да су средње вредности измерених концентрација за све периоде приближно једнаке и да не постоји значајна веза између старости објекта и вредности концентрација измерених у њима. Благо повишена средња концентрација одређена у објектима саграђеним после 2000. године заснована је на само три узорка и истовремено укључује и најнижу и највишу измерену вредност, тако да ово не може утицати на општи закључак.

ЗАКЉУЧАК

У овој докторској дисертацији обрађено је више тема везаних за радон, његову еманацију и ексхалацију из различитих материјала, као и неке од метода мерења концентрација радона и његових краткоживећих потомака у ваздуху.

Извршено је рачунање еманационе фракције, засноване искључиво на узмаку радона ^{222}Rn након алфа-распада радијума ^{226}Ra у грануларним материјалима. Унутрашњост материјала је представљена бесконачним скупом идеално-сферних зрна, пакованих у складу са моделима просте кубне и површински центриране кубне структуре. Резултати су добијени коришћењем Монте-Карло методе и аналитичког приступа. Разматрана је хомогена расподела радијума у запремини зрна и расподела у површинском слоју зрна дебљине једнаке домету радона у датом материјалу (SiO_2), при чему су добијене веома различите вредности и понашање функција у ова два случаја. У случају хомогене расподеле по читавој запремини зрна, функција еманационе фракције опада са порастом полупречника зрна услед драстичног смањења вероватноће изласка радона из зрна у којима настаје. Ред величине еманационе фракције се креће у опсегу од 10^{-4} (за зрна полупречника неколико микрометара) до 10^{-6} (за полупречнике од неколико милиметара). Насупрот томе, при површинској расподели радијума у зрну, еманациона фракција расте са порастом полупречника (услед повећања величине пора између зрна) и приближава се вредности од 0.25. Поређење са релативно високим вредностима еманационе фракције, која је експериментално мерена код већине материјала у природи, иде у прилог нехомогеној расподели радијума у зрнима, постојању мреже унутрашњих пора у структури самих зрна и доприносу додатних механизма еманације.

Јачина ексхалације радона ^{222}Rn је измерена за 15 узорак материјала који се најчешће користе у грађевинарству. Сваки појединачни узорак је постављан у затворену комору, повезану са уређајем RAD7 који је током 7-10 дана континуирано пратио промене концентрације радона у комори. Резултати су добијени фитовањем експерименталних података. Параметри који се односе на допринос самог система и процес цурења радона из коморе су претходно одређени праћењем опадања концентрације радона у комори без узорака. Измерене вредности површинских јачина ексхалације чврстих (компактних) узорака се крећу у опсегу од $1.4 \text{ mBq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ до $855 \text{ mBq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, док масене јачине ексхалације грануларних узорака имају вредности од $1.3 \text{ mBq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}$ до $11.4 \text{ mBq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}$. Оправданост изражавања јачине ексхалације грануларних узорака по јединици масе је

проверена коришћењем узорка постављеног у посуде различитих површина отвора. Извршена је и гамаспектрометријска анализа узорака грађевинских материјала коришћењем HPGe германијумског детектора. Средње вредности измерених специфичних активности ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K износе 35, 39 и 368 Bq kg⁻¹, респективно и ниже су од светских просечних вредности за грађевинске материјале. Није пронађена значајна корелација између измерених јачина ексхалације радона ^{222}Rn и специфичних активности ^{226}Ra у чврстим узорцима.

У делу дисертације који се бави различитим методама мерења концентрација радона и његових потомака у ваздуху, изведене су формуле за аналитичко рачунање геометријске ефикасности детектора облика диска за честице коначног домета, емитоване из тачкастог извора. Појединачно су разматрани различити случајеви, у зависности од домета честица, димензија детектора и његовог положаја у односу на извор. Анализа је проширена и на проблем постојања критичног угла детекције, са конкретном применом на CR-39 детектор, уз коришћење израза који повезује вредности критичног угла са упадном енергијом алфа-честица. Резултати аналитичке методе су поређени са вредностима добијеним коришћењем Монте Карло симулација. Иако Монте Карло метод пружа могућност далеко једноставнијег решавања, аналитичко разматрање омогућава боље разумевање проблематике и у појединим случајевима даје једноставне изразе за израчунавање ефикасности.

У раду је такође представљен софтвер за одређивање калибрационог коефицијента CR-39 детектора у дифузионим коморама за мерење концентрације радона. Прилагођавањем улазних параметара, програм се може користити за оптимизацију процеса мерења и калибрацију детектора различитих величина, смештених у конусне и цилиндричне коморе произвољних димензија. Резултати које програм даје за различите облике V функције поређени су са вредностима калибрационих коефицијената доступним у литератури. Функције коју су у раду означене бројевима 1 [Durrani и Bull, 1987; Green и др, 1982] и 5 [Hersmdorf, 2009] дале су најбоље слагање са експериментално добијеним резултатима.

Детаљно је анализирана метода мерења концентрација краткоживећих потомака радона (^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi) и торона (^{212}Pb , ^{212}Bi), заснована на филтрирању ваздуха и мерењу алфа-активности са филтера. Разматран је узрок појаве нетачних и физички неприхватљивих вредности које се често добијају као резултат експерименталне примене ове методе. Симултано мерење концентрација потомака је јако ограничено и може довести до великих релативних грешки због осетљивости методе на статистичке промене одброја регистрованих током мерних интервала. Анализиране су промене релативних стандардних девијација у зависности од концентрација потомака, времена филтрирања и избора мерних интервала. Показано је да се задовољавајућа тачност добијених резултата може очекивати само у

случају релативно високих концентрација потомака у ваздуху. Добијено оптимално време филтрирања (20-30 min) и интервали мерења алфа-активности са филтера су у добром слагању са ранијим препорукама других аутора. Оптимизација мерног процеса зависи од тачности која се жели постићи при мерењу концентрација појединачних потомака. Метод се може сматрати прилично ефикасним за одређивање концентрације олова ^{212}Pb у ваздуху, с обзиром да су добијене вредности релативног стандардног одступања за овај потомак мање од 15% у свим разматраним случајевима. Једначине промене активности на филтеру за време самог процеса филтрирања предвиђају сатурацију активности радонових потомака након 3 h, док су активности торонових потомака, ^{212}Pb и ^{212}Bi , на филтеру приближно једнаке, а сатурирају тек након 3 дана филтрирања. У дисертацији је предложен и једноставан метод за директну процену укупног РАЕС-а радонових потомака, заснован на мерењу сатурационе активности измерене са филтера, без потребе одређивања појединачних концентрација потомака у ваздуху.

У оквиру експерименталног дела рада, у дисертацији су приказани резултати мерења концентрација радона у школским установама на територији града Крагујевца. Истраживање је обухватило сва јавна обданишта, основне и средње школе. Мерења су вршена помоћу UFO-комора и поликарбонатних детектора који су, након тромесечног излагања, били подвргнути процесу електрохемијског нагризања. Детектори су претходно калибрисани излагањем извору радона у комори повезаној са уређајем RAD7. Добијене вредности концентрација су релативно ниске и крећу се у опсегу од 25 до 145 Bq m⁻³.

РЕФЕРЕНЦЕ

Abbas M.I., (2006) Analytical calculations of the solid angles subtended by a well-type detector at point and extended circular sources. *Applied Radiation and Isotopes* 64, 1048-1056.

Åkerblom G., Mellander H. (1997) Geology and radon. In: Durrani SA, Ilic R Radon measurements by etched track detectors. World Scientific, Singapore, 21-49.

Amgarou K., Font L., Baixeras C. (2003) A novel approach for long-term determination of indoor ^{222}Rn progeny equilibrium factor using nuclear track detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 506, 186-198.

Antovic N., Vukotic P., Zekic R., Svrkota R., Ilic R. (2007) Indoor radon concentrations in urban settlements on the Montenegrin Coast. *Radiation Measurements* 42, 1573-1579.

Askari H.R., Ghandi Kh., Rahimi M., Negarestani A. (2008) Theoretical calculation on CR-39 response for radon measurements and optimum diffusion chambers dimensions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 596, 368-383.

Balek V., Beckman I.N. (2005) Theory of emanation thermal analysis XII. Modelling of radon diffusion release from disordered solids on heating. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry* 82, 755–759.

Barillon R., Fromm M., Chambaudet A. (1995) Variation of the critical registration angle of alpha particles in CR39: Implications for radon dosimetry. *Radiation Measurements* 25, 631-634.

Barton T.P., Ziemer P.L. (1986) The effects of particle size and moisture content on the emanation of Rn from coal ash. *Health Physics* 50, 581-588.

Beckman I.N., Balek V. (2002) Theory of emanation thermal analysis XI. Radon diffusion as the probe of microstructure changes in solids. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry* 67, 49-61.

Benton E.V. (1968) A Study of Charge Particle Tracks in Cellulose Nitrate. U. S. Naval Radiological Defense Laboratory. Report TR-68-14.

Bethe H. (1930) Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie, Annalen der Physik, 397, 325-400.

Bloch F. (1933) Bremsvermögen von Atomen mit mehreren Elektronen. Zeits. Phys. 81, 363-376.

Bohicchio F., Zunic Z.S., Carpentieri C., Antignani S., Venoso G., Carelli V., Cordedda C., Veselinovic N., Tollefsen T., Bossew P. (2014) Radon in indoor air of primary schools: a systematic survey to evaluate factors affecting radon concentration levels and their variability. Indoor Air 24, 315-326.

Bossew P. (2003) The radon emanation power of building materials, soils and rocks. Applied Radiation and Isotopes 59, 389-392.

Brun C., Fromm M., Jouffrey M., Meyer, P., Groetz J.E., Abel F., Chambaudet A., Dorschel B., Hermsdorf D., Bretschneider R., Kadner K., Kuhne H. (1999) Intercomparative study of the detection characteristics of the CR-39 SSNTD for light ions: present status of the Besancon – Dresden approach. Radiation Measurements 31, 89-98.

Burghele B.D., Cosma C. (2012) Thoron and radon measurements in Romanian schools. Radiation Protection Dosimetry 152, 38-41.

Calamosca M., Penzo S., Gualdrini G. (2003) Experimental determination of CR-39 counting efficiency to α particles to design the holder of a new radon gas dosimeter. Radiation Measurements 36, 217-219.

Chen J., Rahman N.M., Atiya I.A. (2010) Radon exhalation from building materials for decorative use. Journal of Environmental Radioactivity 101, 317-322.

Chunxiang Z., Daling L. (1983) Measurement of mixed radon and thoron daughter concentrations in air. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* 215, 481-488.

Clouvas A., Xanthos S., Takoudis G. (2011) Indoor radon levels in Greek schools. *Journal of Environmental Radioactivity* 102, 881-885.

Cook J. (1980) Solid angle subtended by two rectangles. *Nuclear Instruments and Methods* 178, 561-564.

Conway J.T. (2006) Generalizations of Ruby's formula for the geometric efficiency of a parallel-disk source and detector system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 562, 146-153.

Conway J.T. (2010a) Analytical solution for the solid angle subtended at any point by an ellipse via a point source radiation vector potential. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 614, 17-27.

Conway J.T. (2010b) Geometric efficiency for a circular detector and a linear source of arbitrary orientation and position. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 622, 555-566.

De Martino S., Sabbarese C., Monetti G. (1998) Radon emanation and exhalation rates from soils measured with an electrostatic collector. *Applied Radiation and Isotopes* 49, 407-413.

Doi M., Kobayashi S., Fujimoto K. (1992) A passive measurement technique for characterisation of high-risk houses in Japan due to enhanced levels of indoor radon and thoron concentrations. *Radiation Protection Dosimetry* 45, 425-430.

Doi M., Fujimoto K., Kobayashi S., Yonehara H. (1994) Spatial distribution of thoron and radon concentrations in the indoor air of a traditional Japanese wooden house. *Health Physics* 66, 43-49.

Durcik M., Havlik F., Vicanova M., Nikodemova D. (1997) Radon risk assessment in Slovak kindergartens and basic schools. *Radiation Protection Dosimetry* 71, 201-206.

Durrani S.A., Bull R.K. (1987). Solid State Nuclear Track Detection. Principles, Method and Applications. Pergamon Press, Oxford.

Durrani S.A. (1997). Alpha-particle etched track detectors. In: Durrani SA, Ilic R Radon measurements by etched track detectors. World Scientific, Singapore, 77-100.

Dupree S. A., Fraley S. K. (2001) A Monte Carlo Primer – A practical Approach to Radiation Transport. Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York.

Eappan K.P., Mayya Y.S. (2004) Calibration factors for LR-115 (type-II) based radon thoron discriminating dosimeter. Radiation Measurements 38, 5-17.

EL-Hussein A., Mohamemed A., Abd EL-Hady M., Ahmed A.A., Ali, A.E., Barakat A. (2001) Diurnal and seasonal variation of short-lived radon progeny concentration and atmospheric temporal variations of ^{210}Pb and ^7Be in Egypt. Atmospheric Environment 35, 4305-4313.

Faul H. (1954) Nuclear Geology. John Wiley & Sons, New York.

Favorite J.A. (2008) Maximum polar angle subtended by a right circular cylinder. Annals of Nuclear Energy 35, 2195-2199.

Fleischer R.L., Price P.B., Walker R.M., (1965) Solid state track detectors: Applications to nuclear science and geophysics, Annual Review of Nuclear and Particle Science 15, 1-28.

Fleischer R.L. (1980) Isotopic disequilibrium of uranium: Alpha-recoil damage and preferential solution effects. Science 207, 979-981.

Fleischer, R.L. (1982) Alpha-recoil damage and solution effects in minerals: Uranium isotopic disequilibrium and radon release. Geochimica et Cosmochimica Acta 46, 2191-2201.

Fleischer R.L. (1988) Alpha-recoil damage: Relation to isotopic disequilibrium and leaching of radionuclides. Geochimica et Cosmochimica Acta 52, 1459-1466.

Fleischer R.L. (1997) Radon: Overview of properties, Origin and Transport. In: Durrani SA, Ilic R Radon measurements by etched track detectors. World Scientific, Singapore, 1-21.

Forkapic S., Bikit I., Slivka J., Conkic LJ., Veskovic M., Todorovic N., Varga E., Mrda D., Hulber E. (2007) Indoor radon in rural dwellings of the South-Pannonian region. Radiation Protection Dosimetry 123, 378-383.

Gäggeler H.W., Jost D.T., Baltensperger U., Schwikowski M. (1995) Radon and thoron decay product and ^{210}Pb measurements at Jungfraujoch, Switzerland. Atmospheric Environment 29, 607-616.

Gaidolfi L., Malisan M.R., Bucci S., Cappai M., Bonomi M., Verdi L., Boichichio F. (1998) Radon measurements in kindergartens and schools of six Italian Regions. Radiation Protection Dosimetry 78, 73-76.

Garawi M.S. (1996) Measurement of Radon Concentration in Private Houses in the Eastern Part of Al-Qaseem Province of Saudi Arabia. Radiation Protection Dosimetry 63, 227-230.

Gardner R.P., Verghese K. (1971) On the solid angle subtended by a circular disc. Nuclear Instruments and Methods 93, 163-167.

Gotoh H., Yagi H. (1971) Solid angle subtended by a rectangular slit. Nuclear Instruments and Methods 96, 485-486.

Green M.V., Aamodt R.L., Johnston G.S. (1974) The solid angle subtended by a solid, right, circular cylinder as seen from a point in space. Nuclear Instruments and Methods 117:409-412.

Green P.G., Ramli A.G., Al-Najjar A.R., Abu-Jarad F., Durrani S.A. (1982) A study of bulk etch rates and track-etch rates in CR-39. Nuclear Instruments and Methods 203, 551-559.

Griffith R.V., Tommasino L. (1990) Etch Track Detectors in Radiation Dosimetry; In: Dosimetry of Ionizing Radiation (eds. K. Kase, et al.) Academic Press, Inc. 3, 323-426.

Guo SL, Chen BL, Durrani SA (2012) Solid-State Nuclear Track Detectors, Handbook of Radioactivity Analysis (Third Edition), Chapter 4, 233-298.

Hassan N.M. (2014) Radon emanation coefficient and its exhalation rate of wasted petroleum samples associated with petroleum industry in Egypt, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 299, 111-117.

Hersmdorf D. (2009) Evaluation of the sensitivity function V for registration of α -particles in PADC CR-39 solid state nuclear track detector material. Radiation Measurements 44, 283-288.

Hermsdorf D., Hunger M. (2009) Determination of track etch rates from wall profiles of particle tracks etched in direct and reversed direction in PADC CR-39 SSNTDs. Radiation Measurements 44, 766-774.

Hermsdorf D., Reichelt U. (2010) Measurement of track opening contours of oblique incident ^4He and ^7Li -ions in CR-39: Relevance for calculation of track formation parameters, Radiation Measurements 45, 1000-1013.

Hosseini-Ashrafi M.E., Spyrou N.M. (1992) Calculation of the average solid angle subtended by a photon-emitting source at a collimated detector and the contribution of collimator edge penetration. Int. J. Radiat. Appl. Instr. Part A. Applied Radiation and Isotopes 43, 1449-1460.

Howard A.J. (1993) Measurement of ^{220}Rn and ^{222}Rn emanation rates for solids, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 73, 53-62.

Hunyadi I., Csige I., Haki J., Hertelendi E., Vasarhelyi A. (1995). Radon enriched deep earth-gas upflow in a seismically active inhabited area. Proceedings of 3rd International Colloquium on Rare Gas Geochemistry, Amritsar.

ICRP - International Commission on Radiological Protection (1993) Protection Against Radon at Home and Work. Ann. ICRP Publ. 65, Pergamon, Oxford.

Ilic R., Sutej, T. (1997). Radon monitoring devices based on etched track detectors. In: Durrani SA, Ilic R Radon measurements by etched track detectors. World Scientific, Singapore, 103-124.

Ilic, R., Durrani, S.A., 2003. Solid state nuclear track detectors (Chapter 3). In: L'Annunziata, M.F. (Ed.), Handbook of Radioactivity Analysis, second ed. Elsevier Science, USA, 179-237.

Iskandar D., Yamazawa H., Iida T. (2004) Quantification of the dependency of radon emanation power on soil temperature. Applied Radiation and Isotopes 60, 971-973.

Islam G. S., Haque A.K.F. (1994) Measurement of mixed radon and thoron daughter concentrations using alpha and beta activities filtered from air. Radiation Measurements 23, 737-742.

Ismail A.H., Jaafar M.S. (2011) Design and construct optimum dosimeter to detect airborne radon and thoron gas: Experimental study. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 269, 437-439.

Jacobi W (1972) Activity and potential a energy of ^{222}Rn and ^{220}Rn daughters in different air atmosphere. Health Physics 22, 441-450.

Jones I.S. (1996) The solid angle subtended by a circular disc with application to road signs. Int. International Journal of Mathematical Education in Science and Technology 27, 667-674.

Kalkwarf D.R., Jackson P.O., Kutt J.C. (1985) Emanation coefficients for Rn in sized coal fly ash. Health Physics 48, 429-436.

Keller G., Hoffmann B., Feigenspan T. (2001) Radon permeability and radon exhalation of building materials. Science of the Total Environment 272, 85-89.

Khan, A. J., Prasad, R., Tyagi, R.K. (1992) Measurement of radon exhalation rate from some building materials. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part D. Nuclear Tracks and Radiation Measurements* 20, 609-610.

Knoll G.F. (1999) *Radiation Detection and Measurement* - 3rd edition. New York, John Wiley & Sons, Chapter 3.

Krishnaswami, S., Seidemann, D.E. (1988) Comparative study of ^{222}Rn , ^{40}Ar , ^{39}Ar and ^{37}Ar leakage from rocks and minerals: implication for the role of nanopores in gas transport through natural silicates. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 52, 655-658.

Kumar A., Singh S. (2004). Radon exhalation studies in building materials using solid-state nuclear track detectors. *Pramana – Journal of Physics* 62, 143-146.

Levinson A.A., Coetzee G.L. (1978) Implications of disequilibrium in exploration for uranium ores in the surficial environment using radiometric techniques – a review. *Minerals Science and Engineering* 10, 19-27.

Lux I., Koblinger L. (1991) *Monte Carlo particle transport methods: Neutron and photon calculation*, CRC Press Boca Raton, Boston.

Maged A.F. (2006) Radon concentrations in elementary schools in Kuwait. *Health Physics* 90, 258-262.

Mahlobo M., Farid S. M. (1992) Radon Dosimetry Using Plastic Nuclear Track Detector. *Journal of Islamic Academy Sciences* 5:3, 153-157.

Marsh J.W., Bessa Y., Birchall A., Blanchardon E., Hofmann W., Nosske D., Tomasek L. (2008) Dosemetric models used in the alpha-risk project to quantify exposure of uranium miners to radon gas and its progeny. *Radiation Protection Dosimetry* 130, 101-106.

Manno I. (1999) *Introduction to the Monte-Carlo method*, Akademiai Kiado, Budapest.

Megumi K., Mamuro T. (1974) Emanation and exhalation of radon thoron gases from soil particles. *Journal of Geophysical Research* 79, 3357-3360.

Monnin M.M., Seidel J.L. (1997). Radon measurement techniques. In: Durrani SA, Ilic R Radon measurements by etched track detectors. World Scientific, Singapore, 51-65.

Najam L.A., Tawfiq N.F., Mahmood R.H. (2013) Radon concentration in some building materials in Iraq using CR-39 track detector. *International Journal of Physics* 1, 73-76.

Nazaroff W.W. (1984) Optimizing the total-alpha three count technique for measuring concentrations of radon progeny in residences. *Health Physics* 46, 395-405.

Nazaroff W.W., Moed B.A., Sextro R.G. (1988) Soil as a source of indoor radon: generation, migration, and entry. In: Nazaroff, W.W., Nero, A.V. (Eds.), *Radon and Its Decay Products in Indoor Air*. John Wiley & Sons, New York, 57–112.

Nazaroff W.W. (1992) Radon transport from soil to air. *Reviews of Geophysics* 30, 137-160.

Nikezic D., Markovic P., Bek-Uzarov Dj. (1992) Calculating the calibration coefficient for radon measurements with the bare LR 115 II track detector. *Health Physics* 62, 239-244.

Nikezic D., Markovic P., Bek-Uzarov Dj. (1993) Determination of calibration coefficient for radon measurements using a track detector. *Health Physics* 64, 628-632.

Nikezic D., Kostic D., Krstic D., Savovic S. (1995) Sensitivity of radon measurements with CR-39 track etch detector: a Monte Carlo study. *Radiation Measurements* 25, 647-648.

Nikezic D., Yu K.N. (1998) The influence of thoron and its progeny on radon measurements with CR-39 detectors in diffusion chambers. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 419, 175-180.

Nikezic D., Yu K.N. (1999) Modelling radon progeny behaviour on surfaces and note on radon retrospective exposure. Radiation Protection Dosimetry 82, 141-146.

Nikezic D., Yu K.N. (2004) Formation and growth of tracks in nuclear track materials. Materials Science and Engineering R 46, 51-123.

Nikezic D., Stevanovic N. (2005) Radon progeny behavior in diffusion chamber. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 239, 399-406.

Nikezic D., Yu K.N. (2006) Computer program TRACK_TEST for calculating parameters and plotting profiles for pits in nuclear track materials. Computer Physics Communications 174, 160-165.

Nikezic D., Yu K.N. (2008) Computer program TRACK_VISION for simulating optical appearance of etched tracks in CR-39 nuclear track detectors. Computer Physics Communications 178, 591-595.

Obed R.I., Ademola A.K., Vascotto M, Giannini G. (2011) Radon measurements by nuclear track detectors in secondary schools in Oke-Ogun region, Nigeria. Journal of Environmental Radioactivity 102, 1012-1017.

Patiris D.L., Blekas K., Ionnides K.G. (2007) TRIAC II. A Matlab code for track measurements from SSNT detectors. Computer Physics Communications 177, 329-338.

Palacios D., Sajo-Bohus L., Greaves E.D. (2005) Radon progeny distributions inside a diffusion chamber and their contributions to track density in SSNT detectors. Radiation Measurements 40, 657-661.

Palacios D., Palacios F., Sajo-Bohus L., Barros H., Greaves E.D. (2008) LR-115 detector response to ^{222}Rn , ^{220}Rn and their progenies, exposed to hemispherical surfaces in free air, and design of a system to calculate their concentrations. Radiation Measurements 43, 435-439.

Papp Z., Dezső, Z. (2006) Measuring radon progeny and thoron progeny in air by absolute beta counting subsequent to grab sampling. *Radiation Measurements* 41, 617-626

Pogorski S.R., Phillips C.R. (1985) An optimised fourcount total-alpha measurement scheme for the detection of radon progeny and lead-212 in air. *Radiation Protection Dosimetry* 12, 45-53.

Pommé S. (2007) The solid angle subtended by a circular detector for a linear source. *Applied Radiation and Isotopes* 65, 724-727.

Porstendörfer J. (1994) Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. *Journal of Aerosol Science* 25, 219-263.

Prata M.J. (2003) Solid angle subtended by a cylindrical detector at a point source in terms of elliptic integrals. *Radiation Physics and Chemistry* 67, 599-603.

Prata M.J. (2004) Analytical calculation of the solid angle subtended by a circular disc detector at a point cosine source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 521, 576-585.

Pressyanov D.S. (2008) Radon progeny distribution in cylindrical diffusion chambers. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 596, 446-450.

Rahman S.U., Matiullah, Anwar J. (2009) Assessment of the dose received by students and staff in schools in the Rawalpindi region of Pakistan due to indoor radon. *Journal of Radiological Protection* 29, 273-277.

Rama, Moore W.S. (1984) Mechanism of transport of U-Th series radioisotopes from solids into groundwater. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 48, 395-399.

Righi S., Bruzzi L. (2006) Natural radioactivity and radon exhalation in building materials used in Italian dwellings. *Journal of Environmental Radioactivity* 88, 158-170.

Ruby L. (1994) Further comments on the geometrical efficiency of a parallel-disk source and detector system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 337, 531-533.

Ruzer L., Sextro R. (1997) Measurement of radon decay products in air by alpha and beta spectrometry. *Radiation Protection Dosimetry* 72, 43-48.

Sakoda A., Nishiyama Y., Hanamoto K., Ishimori Y., Yamamoto Y., Kataoka T., Kawabe A., Yamaoka K. (2010) Differences of natural radioactivity and radon emanation fraction among constituent minerals of rock or soil. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 1180-1184

Sakoda A., Hanamoto K., Ishimori Y., Kataoka T., Kawabe A., Yamaoka K. (2010a) First model of the effect of grain size on radon emanation, *Applied Radiation and Isotopes* 68, 1169-1172.

Sakoda A., Ishimori Y., Yamaoka K. (2011) A comprehensive review of radon emanation measurements for mineral, rock, soil, mill tailing and fly ash. *Applied Radiation and Isotopes* 69, 1422-1435.

Sasaki T., Gunji Y., Okuda T. (2004) Mathematical modeling of radon emanation. *Journal of Nuclear Science and Technology* 41, 142-151.

Савовић С. (2003) Основи Монте-Карло метода са примерима примене у нуклеарној физици. ПМФ, Крагујевац.

Shoeib M.Y., Thabayneh K.M. (2014) Assessment of natural radiation exposure and radon exhalation rate in various samples of Egyptian building materials, *Journal of Radiation Research and Applied Sciences* 7, 174-181

Shutt R.P. (1967) In: *Bubble and Spark Chambers, Principles and Uses*, vol. I and II. Academic Press, New York, p. 656.

Silk E.C.H., Barnes R.S. (1959) Examination of fission fragment tracks with an electron microscope, *Philosophical Magazine* 4, 970-972.

Sima O. (1995) Computation of the calibration factor for the cup type SSNTD radon monitor. *Radiation Measurements* 25, 603-606.

Sima O. (2001) Monte Carlo simulation of radon SSNT detectors. *Radiation Measurements* 34, 181-186.

Singh K., Singh S., Mehra R., Singh M., Sahota H.S., Papp Z. (2006) Measurement of radon and thoron progeny outdoors in Malout, India, using grab aerosol sampling and beta counting. *Radiation Measurements* 41, 108-111.

Stevanovic N., Markovic V., Urosevic V., Nikezic D. (2009) Determination of parameters of the Jacobi room model using the Brownian motion model, *Health Physics* 96, 48-54.

Stoulos S., Manolopoulou M., Papastefanou C. (2003) Assessment of natural radiation exposure and radon exhalation from building materials in Greece. *Journal of Environmental Radioactivity*, 69, 225-240

Stranden E., Kolstad A.K., Lind B. (1984) The influence of moisture and temperature on radon exhalation. *Radiation Protection Dosimetry* 7, 55-58.

Strong K.P., Levins D.M. (1982) Effect of moisture content on radon emanation from uranium ore and tailings. *Health Physics* 42, 27-32.

Стојановић М., Радосављевић С. и Мартиновић Ј. (1993) Особине урана и његова дистрибуција у земљишту и биљкама (Утицај употребе фосфорних ђубрива на контаминацију ураном). Српска Академија Наука и Уметности, Књига LXXII, Београд

Swedjemark G.A. (1983) The Equilibrium Factor F., Special Issue on Indoor Radon. *Health Physics* 45, 453-462.

Synnott H., Hanley O., Fenton D., Colgan P.A. (2006) Radon in Irish schools: the results of a national survey. *Journal of Radiological Protection* 26, 85-96.

Timus D.M., Prata M.J., Kalla S.L., Abbas M.I., Oner F., Galiano E. (2007) Some further analytical results on the solid angle subtended at a point by a circular disk using elliptic integrals. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 580, 149-152.

Tommasino L. (1970) Electrochemical etching of damaged track detectors by H. V. pulse and sinusoidal waveform. In: *Internal Rept. Lab. Dosimetria e Standardizzazione*. CNEN Casaccia, Rome.

Trevisi R., Leonardi F., Simeoni C., Tonnarini S., Veschetti M. (2012) Indoor radon levels in schools of South-East Italy. *Journal of Environmental Radioactivity* 112, 160-164.

Tryka S. (1997) Angular distribution of the solid angle at a point subtended by a circular disk. *Optics Communications* 137, 317-333.

Ujic P., Celikovic I., Kandic A., Vukanac I., Djurasevic M., Dragosavac D., Zunic Z.S. (2010) Internal exposure from building materials exhaling ^{222}Rn and ^{220}Rn as compared to external exposure due to their natural radioactivity content. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 201-206.

UNSCEAR (1993) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. Report to General Assembly with Scientific Annexes, United Nations, New York.

UNSCEAR (2000) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Sources and effects of ionizing radiation. Report to General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations, New York

UNSCEAR (2006) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Effects of ionizing radiation, Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations, New York.

UNSCEAR (2008) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Sources and effects of ionizing radiation. Annex B: Exposure of the public and workers from various sources of radiation. United Nations, New York.

Venoso G., De Cicco F., Flores B., Gialanella L., Pugliese M., Roca V., Sabbarese C. (2009) Radon concentrations in schools of the Neapolitan area. *Radiation Measurements* 44, 127-130.

Whitcher R. (2002) Calculation of the average solid angle subtended by a detector to source in a parallel plane by Monte Carlo method. *Radiation Protection Dosimetry* 102, 365-369.

WHO - World Health Organization (2005) Fact Sheet No. 291: Radon and cancer. <http://www.who.int/mediacentre/factsheets/fs291/en/index.html>

Wielopolski L. (1984) Monte Carlo calculation of the average solid angle subtended by a parallelepiped detector from a distributed source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 226, 436-448.

Wilson J.G. (1951) *The Principles of Cloud-chamber Technique*. Cambridge University Press

Yi C.Y., Jun J.S. (1997) Calculation of the average solid angle subtended by a circular disc detector to a circular disc source. *Radiation Protection Dosimetry* 69, 149-154.

Young D.A. (1958) Etching of radiation damage in lithium fluoride. *Nature* 182, 375-357.

Yu K.N., Ho J.P.N., Nikezic D., Yip C.W.Y. (2005) Determination of the V function for CR-39 by atomic force microscope. In: Mendez-Vilas, A. (Ed.), *Recent Advances in Multidisciplinary Applied Physics*. Elsevier

Yu K.N., Ng M.F., Nikezic D. (2005a) Measuring of depths of sub-micron tracks in CR-39 detector from replicas using atomic force microscopy. *Radiation Measurements* 40, 380-383.

Yu K.N., Nikezic D. (2009) Long-term measurements of radon progeny concentrations with solid state nuclear track detectors. In: Sidorov, Maksim, Ivanov, Oleg (Eds.), *Nuclear Track Detectors: Design, Methods and Applications*. Nova Science Publishers, Inc (Chapter 2).

Zhang L., Lei X., Guo Q., Wang S., Ma X., Shi Z. (2012) Accurate measurement of the radon exhalation rate of building materials using the closed chamber method. *Journal of Radiological Protection* 32, 315-323

Ziegler J.F. (2004) SRIM 2003 *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 219–220, 1027–1036.

Ziegler J.F., Ziegler M.D., Biersack J.P. (2008) SRIM: stopping and range of ions in matter <http://www.srim.org>

Zunic Z.S., Mc Laughlin J.P., Walsh C., Birovljev A., Simopoulos S.E., Jakupi B., Gordanić V., Demajo M., Trotti F., Falk R., Vanmarcke H., Paridaens J., Fujimoto K. (2001) Integrated natural radiation exposure studies in stable Yugoslav rural communities, *Science of the Total Environment* 272, 253-259.

ДОДАТАК

**РАДОВИ КОЈИ СУ ПРОИСТЕКЛИ ИЗ ДОКТОРСKE
ДИСЕРТАЦИЈЕ**



Hit probability of a disk shaped detector with particles with a finite range emitted by a point-like source

J. Stajic, D. Nikezic*

Faculty of Science, University of Kragujevac, Serbia

ARTICLE INFO

Article history:

Received 9 June 2010

Received in revised form

4 February 2011

Accepted 7 February 2011

Available online 16 February 2011

Key words:

Subtended angle

Circular detector

Alpha particles

Analytical approach

Monte Carlo method

Hit probability

ABSTRACT

An analytical analysis of the geometrical efficiency of a circular detector for particles with a finite range, emitted from a point-like source, is given. Several different cases were determined, depending on the particle range, radius of the detector and the position of the source with respect to the detector. These cases were analyzed separately and different expressions for calculating the hit probability were obtained for each of them. Results were compared with Monte Carlo calculations and good agreement was found. The problem considered here might be relevant for alpha-particle detection under specific conditions.

© 2011 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Many authors have investigated a solid angle subtended by a circular detector at a point-like source (Gardner and Verghese, 1971; Jones, 1996; Prata, 2004; Tryka, 1997; Timus et al., 2007). Some authors treated different detector shapes (Abbas, 2006; Cook, 1980; Conway, 2010a; Favorite, 2008; Gotoh and Yagi, 1971; Green et al., 1974; Hosseini-Ashrafi and Spyrou, 1992; Prata, 2003; Wielopolski, 1984; Whitcher, 2002) and also different source geometries (Conway, 2006, 2010b; Pommé, 2007; Ruby, 1994; Yi and Jun, 1997). Knowledge of the subtended solid angle enables estimation of the geometrical efficiency of such detectors. However, even for the combination as simple as a circular detector and a point-like source, the solution of the problem is very complicated and requires strong mathematical skills. The problem becomes even more difficult if the source emitting particles with a finite range in media between the source and the detector is taken into account.

In the work presented, the hit probability was considered for a circular detector and point-like source emitting particles with a finite range in media between the source and the detector. This problem is very common when detection of alpha particles is carried out. It was treated analytically and several different cases were found. In order to simplify the problem, it was assumed that

all particles emitted from the source have exactly the same range in the medium under consideration, i.e. the source is monoenergetic and range straggling is neglected. Considering this, one can imagine a sphere with radius equal to the particle range and the center located at the point-like source. No particle can reach out of this sphere and if the detector is out of it, the detection probability is equal to zero, i.e., the particle cannot be detected. In this work, a simplified assumption was made that any particle reaching the detector is registered. However, only the part of the detector lying within the sphere is exposed to particles emitted from the source. The cross section between the sphere and the detector can have different forms, depending on the radius of the detector, particle range and source position. All possible cases were analyzed and equations for calculating the probability were obtained for each of them. Some solutions contain integrals that have to be calculated numerically.

2. Method

The geometry of the problem is shown in Fig. 1. The detector is represented by a disk of radius R . The coordinate origin is located at the center of the detector and the z axis is orthogonal to it, so the detector surface belongs to the xOy plane. The source is located at an arbitrary point A with spherical coordinates $(r_0, \theta_0, \varphi_0)$ and it emits particles with range D in media between the source and the detector. Point A' is the projection of point A onto the xOy plane. The problem could be simplified significantly if the

* Corresponding author. Tel.: +381 34 336223; fax: +381 34 335 040.
E-mail address: nikezic@kg.ac.rs (D. Nikezic).



Detection efficiency of a disk shaped detector with a critical detection angle for particles with a finite range emitted by a point-like source

J. Stajic, D. Nikezic *

University of Kragujevac, Faculty of Science, Kragujevac, Serbia

ARTICLE INFO

Article history:

Received 24 July 2011

Received in revised form

24 October 2011

Accepted 26 October 2011

Available online 12 November 2011

Keywords:

Critical angle

Detection probability

CR-39 circular detector

Alpha particles

Analytical approach

Monte Carlo Method

ABSTRACT

Detection efficiency of a circular detector for particles with a finite range, emitted from a point-like source was investigated, taking a critical detection angle into account. Particles emitted from the source lose some of their energy in the surrounding medium, before entering the detector material. Incident-energy dependence of the critical detection angle was taken into account. The part of the detector exposed to the particles impacting at angles greater than the critical angle (with respect to the detector surface), was determined. Several different cases were investigated, depending on the radius of the detector and the position of the detector with respect to the source. Detection probability expressions were derived for each of the cases. Results obtained using these expressions were compared with Monte Carlo calculations.

© 2011 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

The problem of calculating a solid angle subtended by a circular detector at a point-like source has been treated by many authors (Gardner and Verghese, 1971; Jones, 1996; Prata, 2004; Tryka, 1997; Timus et al., 2007). Other source shapes were also considered using different mathematical methods (Galiano and Rodrigues, 2006; Pagnutti and Galiano, 2008; Pommé, 2004; Pommé, 2007). Calculation of the subtended solid angle enables estimation of the geometrical efficiency of the detector. Detection of particles with a finite range in a surrounding medium was investigated in our previous article (Stajic and Nikezic, 2011) and the present work is a continuation and extension of this work. This problem might be relevant for alpha-particle detection with solid state nuclear track detectors, where the critical angle is one of the most important parameters. It was assumed that the source was monoenergetic and range straggling was neglected so that all particles emitted from the source were considered to have exactly the same range in the surrounding medium. Taking this simplification into account, one can imagine a sphere with a radius equal to the particle range and the center located at the point-like source. Particles cannot leave this sphere and only the detector part lying within the sphere is exposed to them. The problem was previously treated under the simple assumption that all particles reaching the

detector were registered i.e. detector characteristics were not taken into account. However, detecting alpha-particles using a SSNT-detector depends on the angle of incidence into the detector surface. A particle that impacts the plastic material of the detector creates damages along its path. Treatment with a suitable etching solution enables formation of tracks that can be visible under an optical microscope (Nikezic and Yu, 2004). If the incident angle is smaller than a certain critical angle (with respect to the detector surface), the particle track will not be visible after etching and the particle will not be detected. This fact must be taken into account while investigating detector efficiency. For given etching conditions, the critical detection angle is considered to be the function of particle incident energy (Barillon et al., 1995; Calamosca et al., 2003; Misdaq et al., 1999). There are several different cases determined by the detector radius and the source position. These cases were analyzed separately and equations for calculating the detection probability were obtained for each of them.

2. Method

Analytical expressions for calculating the probability of hitting a circular detector with particles with a finite range, D , emitted by a point-like source positioned at an arbitrary point A were obtained in our previous work. The coordinate system was chosen in such a way that the detector surface belonged to the xOy -plane and the detector center (O') was located at the x -axis (Fig. 1). The point A' (the projection of point A to xOy -plane) was taken as the coordinate

* Corresponding author. Tel.: +381 34 336223; fax: +381 34 335 040.
E-mail address: nikezic@kg.ac.rs (D. Nikezic).

Computer program for the sensitivity calculation of a CR-39 detector in a diffusion chamber for radon measurements

D. Nikezic,^{1,a)} K. N. Yu,² and J. M. Stajic¹

¹*Faculty of Science, University of Kragujevac, R. Domanovica 12, Kragujevac 34000, Serbia*

²*Department of Physics and Materials Science, City University of Hong Kong, 83 Tat Chee Avenue, Hong Kong*

(Received 19 July 2013; accepted 10 October 2013; published online 14 February 2014)

Computer software for calculation of the sensitivity of a CR-39 detector closed in a diffusion chamber to radon is described in this work. The software consists of two programs, both written in the standard Fortran 90 programming language. The physical background and a numerical example are given. Presented software is intended for numerous researches in radon measurement community. Previously published computer programs TRACK_TEST.F90 and TRACK_VISION.F90 [D. Nikezic and K. N. Yu, *Comput. Phys. Commun.* **174**, 160 (2006); **178**, 591 (2008)] are used here as subroutines to calculate the track parameters and to determine whether the track is visible or not, based on the incident angle, impact energy, etching conditions, gray level, and visibility criterion. The results obtained by the software, using five different V functions, were compared with the experimental data found in the literature. Application of two functions in this software reproduced experimental data very well, while other three gave lower sensitivity than experiment. © 2014 AIP Publishing LLC. [<http://dx.doi.org/10.1063/1.4865157>]

I. INTRODUCTION

Long term, passive measurements of radon (²²²Rn) concentrations in air are performed with solid state nuclear track detectors (SSNTD) that are sensitive to alpha particles emitted by radon and its short lived progeny. Detectors are usually located within a cup that is closed with some permeable substance, like filter paper, which allows radon diffusion and prevents penetration of radon progeny, dust, and humidity into the chamber. Such devices are usually called a “diffusion chamber,” “cup,” or “radon dosimeter.”^{3–5} A survey of various designs and combinations of SSNTD with other media (electrets, active charcoal, etc.) used for radon measurements was given in Nikolaev and Ilic.⁶ More recent developments in the construction of radon dosimeters have been described by Nikezic and Yu.⁷

The track density on a detector, N [track/m²], which is a measurable quantity, is related to the average radon concentration C_0 [Bq/m³] during the irradiation time t [s], through the sensitivity, k [m], as follows:

$$N = kC_0t. \quad (1)$$

Sensitivity is determined experimentally or theoretically. It is defined as track density (in track/m²) per unit exposure (Bqs/m³). Traditionally, sensitivity is given in track/cm² per Bqd/m³ (to be divided by 8.64 to convert to m) or in track/m² per Bqh/m³ (divided by 3600 to convert to m). Experimental conditions during calibration and measurements should be the same, or, if this is not possible, as similar as possible. Any changes in the experimental setup, exposure, etching, or read-out procedure request additional calibration and determination of a new calibration factor.

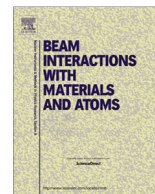
Several authors have presented various calculation methods for sensitivity determination. An analytical method and analysis of all possible cases of geometrical relationships between the effective volume and chamber walls were reported in Askari *et al.*⁸ Unfortunately, problems analyzed by Askari *et al.*⁸ were limited to a point like detector located in the centre of the bottom of a cylindrical diffusion chamber, while in reality the detector has real physical dimensions. Other authors presented Monte Carlo calculations of the calibration coefficient.^{9–19} The Monte Carlo approach is more convenient than the analytical one when real physical dimensions of the detector are considered. Monte Carlo simulation also enables determination of radial track density distribution on detector in the bottom of a diffusion chamber.

Although a lot of effort was devoted to the development of models and calculation of sensitivity, there is no widely available computer software for this purpose. The objective of this work is to provide computer software for calculation of the sensitivity of a CR-39 detector in a diffusion chamber for radon measurements. The program operates for a conical and cylindrical diffusion chambers, assuming that a circular detector is located in the bottom of the chamber. The presented computer software may be used for optimization of the diffusion chamber, detector dimension and shape, and the complete measurement procedure.

II. DESCRIPTION OF COMPUTER PROGRAMS AND INPUT PARAMETERS

The software consists of two programs written in the standard Fortran 90 programming language. The algorithms and codes are relatively simple and may be easily translated into other computer languages. Executable versions are provided and may be downloaded from the following web

^{a)}Author to whom correspondence should be addressed. Electronic mail: nikezic@kg.ac.rs



Theoretical calculation of radon emanation fraction



J.M. Stajic, D. Nikezic*

Faculty of Science, University of Kragujevac, R. Domanovica 12, Kragujevac 34000, Serbia

ARTICLE INFO

Article history:

Received 16 January 2014

Received in revised form 26 May 2014

Accepted 13 June 2014

Available online 11 July 2014

Keywords:

Radon emanation fraction

Monte Carlo method

Simple cubic structure

Face-centered cubic structure

Analytical approach

ABSTRACT

Emanation fraction of radon atoms created in a granular material was estimated using Monte Carlo method. Two models based on different arrangements of grains were considered: one of them representing simple cubic structure and the other one based on face centered cubic structure. As it was expected, the structure that provided higher density of grain packing (FCCS) gave lower values of radon emanation fraction. Both models showed that the probability of radon embedding in the neighboring grains would approach zero for large values of grain radius. Assuming homogenous distribution of ^{226}Ra within the whole grain volume, radon emanation fraction decreased with increasing grain radius while it showed the opposite behavior in the case of surface distribution of ^{226}Ra . The order of magnitude of radon emanation fraction decreased from $10^{-2}\%$ (for grain radius of few micrometers) to $10^{-4}\%$ (for grain radius larger than few millimeters) when homogenous distribution of ^{226}Ra was considered. If the distribution of ^{226}Ra was assumed only within the surface layer of a grain, emanation increased from less than 1% (obtained for grain size of few micrometers) to almost 25% (for large grain radius). The effect of moisture on the emanation fraction was confirmed by examining the case of water filling the space among the grains. Radon emanation was also considered analytically and the results were compared with Monte Carlo calculations.

© 2014 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Radon (^{222}Rn) is naturally occurring radioactive gas created during the decay of radium (^{226}Ra). Radium atoms decay in a material emitting alpha particles with the energy of 4.784 MeV. Radon atoms created during this process recoil with the energy of 86.2 keV [1,2]. They slow down traveling through the grain and most of them lose all their energy before reaching the grain surface. However, radon atoms created near the surface of the grain have some probability to escape the grain, stop in the pore space and then diffuse out of the material. Radon emanation is the process of radon escape from grains of solid material to the pores among the grains [1]. The fraction of all radon atoms that escape the grains and become available for diffusion through the pore space is noted as radon emanation fraction [3,4].

The problems of radon emanation and radon exhalation have been investigated by many authors. Some of them considered theoretical approaches [5,6] while the others used different experimental methods [7–11]. The great effect of moisture content on radon emanation was also reported [12,13].

The purpose of this paper was to present an algorithm for calculation of radon emanation fraction from a granular material,

considering a single grain surrounded by infinitely large number of grains. Some simplifying assumptions were adopted:

- (a) Recoiled radon atom moved in a straight line.
- (b) Radon range was equal to the projected range in the material under consideration (grain material or the material that fills the pore space, depending upon direction of radon recoil).

Two different arrangements of grains were investigated: simple cubic structure (SCS) and face centered cubic structure (FCCS). Both arrangements are possible, although the second one is generally more probable since it provides higher density of packing.

The results of Monte Carlo (MC) calculations were presented for several minerals abundant in nature. Analytical approach was also applied in order to estimate radon emanation fraction for large values of grain radius.

2. Materials and methods

2.1. The probability of escaping a single grain

2.1.1. Analytical approach

In order to estimate radon emanation fraction, a grain of a material was assumed to be a perfect sphere with radius R . Radon atoms created in the grain have nonzero probability to get into the

* Corresponding author. Tel.: +381 643233960.

E-mail address: nikezic@kg.ac.rs (D. Nikezic).

ANALYSIS OF RADON AND THORON PROGENY MEASUREMENTS BASED ON AIR FILTRATION

J. M. Stajic and D. Nikezic*

Faculty of Science, University of Kragujevac, Kragujevac, Serbia

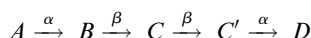
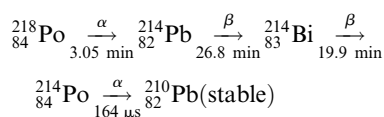
*Corresponding author: nikezic@kg.ac.rs

Received 4 April 2014; revised 9 May 2014; accepted 9 May 2014

Measuring of radon and thoron progeny concentrations in air, based on air filtration, was analysed in order to assess the reliability of the method. Changes of radon and thoron progeny activities on the filter during and after air sampling were investigated. Simulation experiments were performed involving realistic measuring parameters. The sensitivity of results (radon and thoron concentrations in air) to the variations of alpha counting in three and five intervals was studied. The concentration of ^{218}Po showed up to be the most sensitive to these changes, as was expected because of its short half-life. The well-known method for measuring of progeny concentrations based on air filtration is rather unreliable and obtaining unrealistic or incorrect results appears to be quite possible. A simple method for quick estimation of radon potential alpha energy concentration (PAEC), based on measurements of alpha activity in a saturation regime, was proposed. Thoron PAEC can be determined from the saturation activity on the filter, through beta or alpha measurements.

INTRODUCTION

Decay of ^{222}Rn creates short-lived progeny ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi and ^{214}Po as shown below. The bifurcation branch of ^{214}Bi decay through ^{210}Tl was neglected, because of its small probability. Owing to very short half-life, ^{214}Po might be considered in equilibrium with its precursor ^{214}Bi . ^{218}Po and ^{214}Po are alpha emitters, while ^{214}Pb and ^{214}Bi are beta emitters. The decay scheme could be represented as



Short-lived radon progeny can accumulate in human lungs and irradiate sensitive tissues therein. It is shown that inhaled radon progeny cause significantly larger dose than radon itself. Measuring methods for radon and thoron progeny concentrations in atmosphere are usually based on filtration of air, followed by measurements of alpha, beta or gamma activity^(1–6). In the absence of ^{220}Rn (thoron in the text), three time intervals were chosen, obtaining three counts, from where three radon progeny concentrations should be possible to determine. If thoron is present, five intervals are enough to determine both radon and thoron progeny. However, during application of this method, some unrealistic results could be obtained, including: negative concentration for some progeny; unrealistically large

or unrealistically small concentrations; concentration of some progeny being much larger than its precursor, etc. Here, this method was analysed in order to understand the physical background for such behaviour of the method and to propose some model which will be more robust in respect to the count number.

MATERIALS AND METHODS

Direct potential alpha energy concentration determination

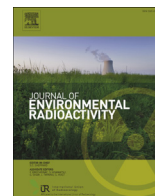
Let n_A , n_B and n_C represent, respectively, numbers of atoms of ^{218}Po , ^{214}Pb and ^{214}Bi per m^3 of air that are pumped through the filter. Assuming that the filtering rate is $v(\text{m}^3\text{s}^{-1})$ and filtering efficiency is η , the following set of equations describes the build-up of numbers of ^{218}Po (N_A), ^{214}Pb (N_B) and ^{214}Bi (N_C) atoms on the filter during filtration:

$$\frac{dN_A}{dt} = n_A v \eta - \lambda_A N_A \quad (1)$$

$$\frac{dN_B}{dt} = n_B v \eta + \lambda_A N_A - \lambda_B N_B \quad (2)$$

$$\frac{dN_C}{dt} = n_C v \eta + \lambda_B N_B - \lambda_C N_C \quad (3)$$

where λ_A , λ_B and λ_C are decay constants of ^{218}Po , ^{214}Pb and ^{214}Bi , respectively. Assuming that numbers of progeny atoms were zero on the filter at the initial moment of filtration, $N_A(0) = N_B(0) = N_C(0)$, the following set of equations was obtained:



The accuracy of radon and thoron progeny concentrations measured through air filtration



J.M. Stajic, D. Nikezic*

Faculty of Science, University of Kragujevac, R. Domanovica 12, Kragujevac 34000, Serbia

ARTICLE INFO

Article history:

Received 2 September 2014

Received in revised form

28 October 2014

Accepted 1 November 2014

Available online 25 November 2014

Keywords:

Air filtration

Alpha activity

Relative standard deviation

System determinant

ABSTRACT

The accuracy and the optimization of determining radon and thoron progeny concentrations in air using air filtration followed by alpha activity measurements were investigated in details. The effects of radon and thoron concentrations, filtering duration and the choice of measuring intervals on relative standard deviations were analyzed. Obtaining satisfactory results by this method should be expected only in the case of high radon and thoron progeny concentrations in air. The optimization process also showed up to be dependent on the progeny concentration. Determinant of the system matrix and its effect on the sensitivity of the results were investigated.

© 2014 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Inhaling high concentrations of radon, thoron and their decay products can cause harmful effects to human lung tissues. Exposure to radon and its progeny has been ranked as the second leading cause of lung cancer after tobacco smoking. This fact justifies the great efforts of scientists all around the world to develop and improve the methods for measuring concentrations of these naturally occurring radionuclides in air. The method based on air filtration, followed by measurements of alpha, beta or gamma activity from filter has been investigated by many authors (EL-Hussein et al., 2001; Gaggeler et al., 1995; Imoto et al., 2001; Papp and Dezső, 2006; Pogorski and Phillips, 1985; Ruzer and Sextro, 1997; Singh et al., 2006). Detecting numbers of counts in several different time intervals, during or after filtering process, should allow solving the system of equations for radon and thoron

progeny concentrations in air. However, those who try to bring this good theoretical concept into practical realization can face the possibility of obtaining incorrect or physically unacceptable results. In our previous work (Stajic and Nikezic, 2014), we investigated the reliability of this method, illustrating the effect of counting statistics on the accuracy of the final results with some concrete and realistic examples.

The purpose of this paper was to present a detailed and more general consideration of the accuracy and the optimization of the measuring method involving air filtration followed by alpha counting. The dependences of standard deviations and the system determinant on radon and thoron concentrations, filtering duration and the choice of measuring intervals were investigated.

2. Material and methods

Radon (^{222}Rn) and thoron (^{220}Rn) decay schemes are given below, with neglecting the decay branches with small probabilities:

* Corresponding author. Tel.: +381 34 336 223; fax: +381 34 335 040.
E-mail address: nikezic@kg.ac.rs (D. Nikezic).

Measurement of radon exhalation rates from some building materials used in Serbian construction

J. M. Stajic · D. Nikezic

Received: 25 June 2014 / Published online: 2 November 2014
© Akadémiai Kiadó, Budapest, Hungary 2014

Abstract The rates of radon exhalation from building materials available on the Serbian market were measured using RAD7 device. Fitting the growth curves of radon activity concentration provided the information on radon exhalation rates from the samples. The results were quite low and they ranged from 1.4 to 855 mBq m⁻² h⁻¹ for surface exhalation rate and from 1.3 to 11.4 mBq kg⁻¹ h⁻¹ for mass exhalation rate. The effect of moisture on radon exhalation was confirmed. For powdered samples with dimensions smaller than radon diffusion length, the mass exhalation rate is independent of sample mass and its exhalation area.

Keywords Radon exhalation rate · Building materials · RAD7

Introduction

Radon (²²²Rn; T_{1/2} = 3.824 days) is a naturally occurring radioactive gas generated by the decay of ²²⁶Ra. A certain fraction of radon created in some material escapes the material and migrates into the atmosphere. Radon and its decay products contribute significantly to radiation dose received by general population [1]. When inhaled by human beings, they have high damaging potential to the lung tissue and they have been identified as the second major cause of lung cancer [2].

Two main sources of radon in the indoor air are ground and building materials used in the construction. The

amount of radon activity released per unit time from unit surface area (or unit mass) of some sample is termed as radon surface (or mass) exhalation rate [3–5]. It depends on the radium content, the spatial distribution of its atoms within the material and the physical properties of the material itself.

Many authors investigated the problem of radon exhalation from different materials [6–11]. A certain amount of a material was usually placed in a closed chamber and measurement of radon activity concentration in the chamber volume was performed during a certain period of time in order to determine radon exhalation rate. Some authors based their experiments on estimating integral radon concentration during the exposure time of solid state nuclear track detectors [12, 13] while others used different active devices for continuous measuring of radon activity concentration [14–16].

The purpose of this work was to measure radon exhalation rates from some building materials often used in Serbian construction. The measuring was performed using closed chamber connected to RAD7 device. Fitting the experimental data provided the information on radon exhalation rates.

Theory

If a sample of some material containing ²²⁶Ra is placed in a closed chamber, a certain amount of radon gas will constantly be exhaled from the sample and accumulated in the chamber volume. Time evolution of radon concentration in the chamber can be described by the following equation:

$$\frac{dN(t)}{dt} = \frac{E_n A + M}{V} - (N(t) - N_{\text{ext}})\lambda_L - N(t)\lambda \quad (1)$$

J. M. Stajic · D. Nikezic (✉)
Faculty of Science, University of Kragujevac, R. Domanovica
12, 34000 Kragujevac, Serbia
e-mail: nikezic@kg.ac.rs

Jelena M. Stajic
Biljana Milenkovic
Dragoslav Nikezic

Faculty of Science, University of
Kragujevac, Kragujevac, Serbia

Research Article

Radon Concentrations in Schools and Kindergartens in Kragujevac City, Central Serbia

Measurements of radon activity concentrations have been conducted in public kindergartens, primary, and secondary schools in Kragujevac City. This study represents the first step towards radon mapping of Central Serbia. Passive discriminative radon/thoron detectors (so called UFO) were used for monitoring. The radon calibration coefficient of $0.026 \text{ (track/cm}^2\text{)/(Bq m}^{-3} \text{ day)}$ was calculated by exposing the UFO detectors in a Rn chamber monitored by a RAD7 device. The Rn concentration was in the range of $27\text{--}145 \text{ Bq m}^{-3}$ in kindergartens and $25\text{--}86 \text{ Bq m}^{-3}$ in schools. The value of the arithmetic mean was 59.6 Bq m^{-3} and the standard deviation was 25.6 Bq m^{-3} . The distribution of the results was well fitted by log-normal function. No significant correlation between measured activity concentrations and periods of building constructions was found.

Keywords: Building construction periods; Indoor radon measurement; Monitoring

Received: November 7, 2014; *revised:* January 27, 2015; *accepted:* April 2, 2015

DOI: 10.1002/clen.201400830

1 Introduction

Radon (^{222}Rn) is a naturally occurring odorless, colorless, tasteless, and chemically inert radioactive gas produced in the decay chain of ^{238}U . ^{222}Rn decays with a half-life of 3.824 days and it is the main source (69%) of internal radiation exposure [1]. The investigations confirming harmful effects of radon and its short-lived decay products on human health have increased the interest of scientists in measuring indoor concentrations of this naturally occurring radioactive gas. In order to assess and control the exposure of young population, systematic surveys of radon levels in schools and kindergartens have been carried out in many countries all over the world [2–11]. The scope of these investigations conducted in our country has mainly covered the regions of Southern and Northern Serbia [12–14].

The aim of this paper is to present the results of radon measurements in public kindergartens, primary, and secondary schools in the city of Kragujevac, Central Serbia. A study of indoor radon concentration is usually carried out in a random sample of dwellings but, for feasibility reasons, it was decided to begin with schools and kindergartens. They are distributed all over the city and their distribution can be considered as an indicator of population density.

2 Materials and methods

2.1 Study area

Kragujevac City ($44^{\circ} 22' \text{ N}$; $20^{\circ} 56' \text{ E}$) is located 120 km south from the capital city, Belgrade. It is the fourth largest city in Serbia, the

main city of the Šumadija Region and the administrative center of the Šumadija District. It covers an area of 835 km^2 and it has a population of 150 835 (according to the census conducted in 2011). The geology of this area spans from the pre-Cambrian period with dominant formations in Quaternary and Neogene period, including Lower Cretaceous Paraflysch and Diabase [15].

The city has 15 public kindergartens, 22 primary, and nine secondary schools and all were included in the study. Some of the detectors got lost during the experiment and the data for these locations were not available.

The map of Kragujevac is given in Fig. 1. The measuring locations were labeled by numbers. Several schools located in the suburbs are not shown in Fig. 1.

2.2 Measurement technique

The Rn concentration was measured using passive discriminative radon/thoron dosimeters (UFO) developed at NIRS, Chiba, Japan [16]. Each dosimeter was made of two hemispheric chambers, with diameters of 120 and 75 mm. The upper hemisphere (120 mm) was provided with eight air inlets, covered by a fiber glass filter in order to prevent Rn and Tn decay products from entering the chamber. The lower hemisphere (75 mm) has only a pinhole air inlet located between two chambers and it interrupts Tn gas entering the lower chamber. Accordingly, Rn and Tn can both enter the upper hemisphere, but only Rn can diffuse into the lower one. Therefore, the percent of Tn entering the lower chamber is negligible [17]. Two Iupilon[®] polycarbonate films were placed between two chambers, one of them facing the upper hemisphere (exposed to Rn and Tn), and the other one looking downward to the lower hemisphere (exposed only to Rn).

Although the UFO detectors have the ability to measure both Rn and Tn concentrations, only Rn was the object of this study. Tn was

Correspondence: Dr. B. Milenkovic, Faculty of Science, University of Kragujevac, R. Domanovic 12, 34000 Kragujevac, Serbia
E-mail: bmilenkovic@kg.ac.rs

Abbreviations: AM, arithmetic mean; GM, geometric mean; GSD, geometric standard deviation; SD, standard deviation

Биографија

Јелена Стајић је рођена 13.03.1984. године у Краљеву, од оца Миломира и мајке Миланке. Завршила је основну школу “Бранко Радичевић” у Витковцу, након чега уписује средњу медицинску школу у Краљеву, смер зубни техничар, коју завршава 2003. године, са просечном оценом 5.00. Исте године се уписује на Природно-математички факултет у Крагујевцу, група физика, смер Дипломирани физичар. Основне студије је завршила 2007. године, са просечном оценом 10 и оценом 10 на дипломском раду.

Школске 2007/2008. године уписала је докторске академске студије на Институту за физику Природно-математичког факултета у Крагујевцу, смер Радијациона физика. Све предмете на докторским студијама, предвиђене програмом и Статутом Факултета, положила је са просечном оценом 10.

Од 2009. године запослена је на Природно-математичком факултету у Крагујевцу као истраживач-приправник, а 2012. године изабрана је у звање истраживач-сарадник.

1. Проучавање еманације, ексхалације и
мерних техника радона

УДК: 539.163

2. Стајић Јелена

Радон, потомци, еманација, ексхалација,
ефикасност детектора, филтрирање
ваздуха

3. Универзитет у Крагујевцу
Природно-математички факултет
Крагујевац, Србија

INVESTIGATION OF RADON EMANATION, EXHALATION AND MEASURING TECHNIQUES

SUMMARY

An algorithm for theoretical calculation of radon ^{222}Rn emanation fraction in granular materials was presented. The emanation based on radon recoil following the decay of ^{226}Ra and alpha particle emission was considered. Monte Carlo method and analytical approach were both applied. The results of the calculations were quite low in comparison to the experimental data, especially in the case of uniform distribution of ^{226}Ra within a grain. This could be explained by inhomogeneous distribution of radium in a solid grain, the existence of pores inside the grain structure and the contribution of other mechanisms of emanation.

The rates of radon ^{222}Rn exhalation from some building materials were measured experimentally using a chamber connected to RAD7 device. Fitting the growth curves of radon concentration in the chamber provided the information on radon exhalation rates. The values ranged from $1.4 \text{ mBq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ to $855 \text{ mBq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ for solid samples and from $1.3 \text{ mBq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}$ to $11.4 \text{ mBq kg}^{-1} \text{ h}^{-1}$ for powdered samples. Gamma-spectrometry of the samples was performed using HPGe detector. The average specific activities of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K were 35, 39 and 368 Bq kg^{-1} , respectively. No significant correlation was found between radon exhalation rates and the specific activities of ^{226}Ra in the samples.

An analytical approach for calculating the geometrical efficiency of a circular detector for particles with a finite range, emitted from a point-like source, was presented. The problem of critical detection angle was also considered. The method can be applied to measuring the concentrations of radon and its decay products using solid state nuclear track detectors. The results of analytical calculation were compared to the values obtained by Monte Carlo Method.

Computer software for calculation of the calibration coefficient of a CR-39 detector for radon concentration measurements was also described. The detector closed in a cylindrical or conical diffusion chamber was analyzed. The software may be used for optimization of the diffusion chamber, detector dimensions and the complete measurement procedure. The results obtained for five different V functions were compared with some experimental values found in the literature.

The well-known method of radon and thoron progeny concentration measurements, based on air filtration followed by total alpha counting, was analyzed in order to assess the reliability of the method. The reasons for obtaining unrealistic or incorrect results were examined. Due to the system sensitivity to statistical errors the method appears to be quite unreliable, especially in the case of low progeny concentrations in air.

Radon activity concentrations in all public schools and kindergartens located in the city area of Kragujevac were measured. UFO passive discriminative radon/thoron detectors were used and radon calibration coefficient was obtained using RAD7 device. The obtained values are relatively low and they do not exceed the proposed limit of 200 Bq m^{-3} .

Dissertation supervisor: Dragoslav Nikezic, PHD

Commission for the dissertation acceptance:

Nikezic D., PHD; Udovicic V., PHD; Stevanovic N., PHD

Title	Investigation of radon emanation, exhalation and measuring techniques
Author	Stajić Jelena
Key words	Radon, progeny, emanation, exhalation, detector efficiency, air filtration
Pages	162
Figures	63
Tables	19
References	149

Kragujevac 2015

ОБРАЗАЦ 1.

Изјава о ауторству

Потписани-а ЈЕЛЕНА СТАЈИЋ
број уписа 1107

Изјављујем

да је докторска дисертација под насловом
ПРОУЧАВАЊЕ ЕМАНАЦИЈЕ ЕКСХАЛАЦИЈЕ И МЕРНИХ
ТЕХНИКА РАДОНА

- резултат сопственог истраживачког рада,
- да предложена дисертација у целини ни у деловима није била предложена за добијање било које дипломе према студијским програмима других високошколских установа,
- да су резултати коректно наведени и
- да нисам кршио/ла ауторска права и користио интелектуалну својину других лица.

У Крагујевцу, 26.11.2015.

Потпис аутора

Jelena Stajic

ОБРАЗАЦ 2.

Изјава о истоветности штампане и електронске верзије докторског рада

Име и презиме аутора ЈЕЛЕНА СТАЈИЋ
Број уписа 1107
Студијски програм ДОКТОРСКЕ АКАДЕМСКЕ СТУДИЈЕ У ИНСТИТУТУ ЗА ФИЗИКУ
Наслов рада ПРОУЧАВАЊЕ ЕМИНАЦИЈЕ, ЕКСХАЛАЦИЈЕ И МЕРНИХ ТЕХНИКА РАЧУНА
Ментор ПРОФ. ДР ДРАГОСЛАВ НИКЕЗИЋ

Потписани ЈЕЛЕНА СТАЈИЋ

изјављујем да је штампана верзија мог докторског рада истоветна електронској верзији коју сам предао/ла за објављивање на порталу **Дигиталног репозиторијума Универзитета у Крагујевцу**.

Дозвољавам да се објаве моји лични подаци везани за добијање академског звања доктора наука, као што су име и презиме, година и место рођења и датум одбране рада.

Ови лични подаци могу се објавити на мрежним страницама дигиталне библиотеке, у електронском каталогу и у публикацијама Универзитета у Крагујевцу.

Потпис аутора

У Крагујевцу, 26.11.2015.

Јелена Stajić

ОБРАЗАЦ 3.

Изјава о коришћењу

Овлашћујем Универзитетску библиотеку да у Дигитални репозиторијум Универзитета у Крагујевцу унесе моју докторску дисертацију под насловом:

ПРОУЧАВАЊЕ ЕМАНАЦИЈЕ ЕКСХАЛАЦИЈЕ И МЕРНИХ ТЕХНИКА
РАДОНА

која је моје ауторско дело.

Дисертацију са свим прилозима предао/ла сам у електронском формату погодном за трајно архивирање.

Моју докторску дисертацију похрањену у Дигитални репозиторијум Универзитета у Крагујевцу могу да користе сви који поштују одредбе садржане у одабраном типу лиценце Креативне заједнице (Creative Commons) за коју сам се одлучио/ла.

1. Ауторство
2. Ауторство - некомерцијално
3. Ауторство - некомерцијално - без прераде
4. Ауторство - некомерцијално - делити под истим условима
5. Ауторство - без прераде
- ☒ 6. Ауторство - делити под истим условима

(Молимо да заокружите само једну од шест понуђених лиценци, чији је кратак опис дат је на обрасцу број 4.).

Потпис аутора

У Крагујевцу, 26.11.2015

Jelena Stajić